

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

12.08.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年 8月30日

出願番号
Application Number: 特願2002-252846
[ST. 10/C]: [JP2002-252846]

出願人
Applicant(s): キヤノン株式会社

REC'D 26 SEP 2003

WIPO PCT

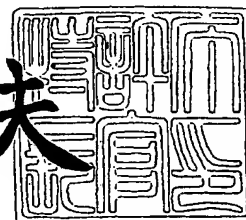
PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

2003年 9月12日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 4690026

【提出日】 平成14年 8月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明の名称】 モノアミノフルオレン化合物およびそれを使用した有機
発光素子

【請求項の数】 10

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 齊藤 章人

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 山田 直樹

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 鈴木 幸一

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 妹尾 章弘

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会
社内

【氏名】 田邊 浩

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社
社内

【氏名】 平岡 美津穂

【発明者】

【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社
社内

【氏名】 根岸 千花

【特許出願人】

【識別番号】 000001007

【氏名又は名称】 キヤノン株式会社

【代理人】

【識別番号】 100096828

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡辺 敬介

【電話番号】 03-3501-2138

【選任した代理人】

【識別番号】 100059410

【弁理士】

【氏名又は名称】 豊田 善雄

【電話番号】 03-3501-2138

【選任した代理人】

【識別番号】 100110870

【弁理士】

【氏名又は名称】 山口 芳広

【電話番号】 03-3501-2138

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 004938

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0101029

【プルーフの要否】 要

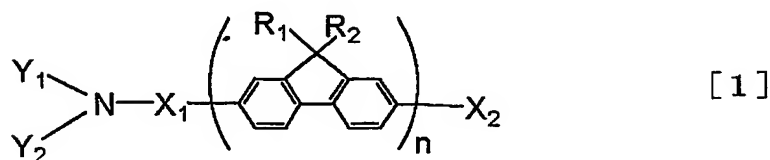
【書類名】 明細書

【発明の名称】 モノアミノフルオレン化合物およびそれを使用した有機発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式〔1〕で示されることを特徴とするモノアミノフルオレン化合物。

【化1】



(X₁は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有するアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基、シリル基、カルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、直接結合でもよい。

X₂は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

Y₁～Y₂は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

また、Y₁およびY₂、またはX₁、Y₁およびY₂は、互いに結合して環を形成していても良い。

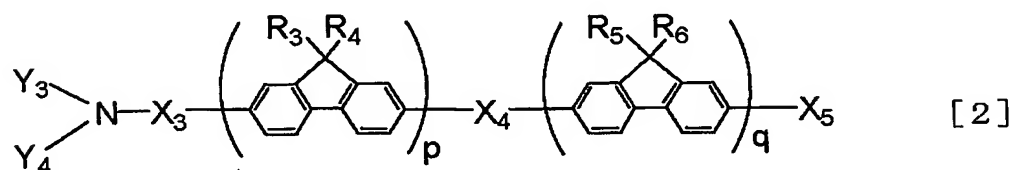
R₁およびR₂は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基

及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なっているもよい。

nは、X₁が直接結合でX₂が水素原子の場合、2～10の整数であり、その他は1～10の整数である。)

【請求項2】 下記一般式〔2〕で示されるモノアミノフルオレン化合物。

【化2】



(X₃～X₄は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、同じであっても異なっているもよく、X₃は直接結合でもよい。

X₅は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

Y₃およびY₄は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なっているもよい。

また、Y₃およびY₄、またはX₃、Y₃およびY₄は、互いに結合して環を形成しているもよい。

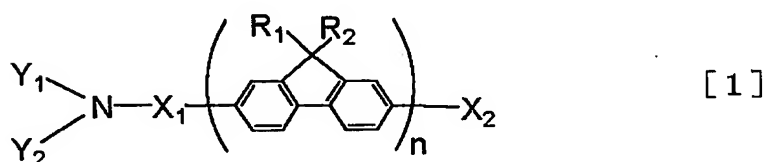
R₃～R₆は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及び

アリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

p, q はそれぞれ 1 以上の整数で、 $p + q$ は 2 ~ 10 の整数である。）

【請求項 3】 陽極および陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一層または複数層の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が下記一般式 [1] で示される化合物を少なくとも一種類含有することを特徴とする有機発光素子。

【化 3】



(X_1 は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有するアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基、シリル基、カルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、直接結合でもよい。

X_2 は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

$Y_1 \sim Y_2$ は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

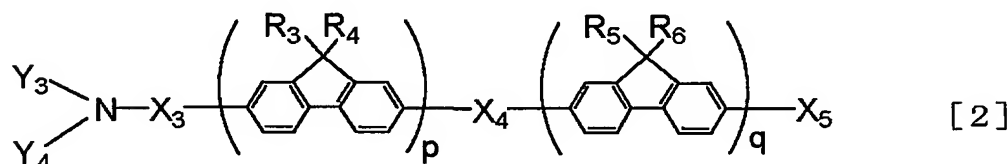
また、 Y_1 および Y_2 、または X_1 、 Y_1 および Y_2 は、互いに結合して環を形成していても良い。

R_1 および R_2 は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なっているもよい。

n は、 X_1 が直接結合で X_2 が水素原子の場合、2～10の整数であり、その他は1～10の整数である。）

【請求項4】 陽極および陰極からなる一对の電極と、該一对の電極間に挟持された一層または複数層の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が下記一般式〔2〕で示される化合物を少なくとも一種類含有することを特徴とする有機発光素子。

【化4】



($X_3 \sim X_4$ は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、同じであっても異なっているもよく、 X_3 は直接結合でもよい。

X_5 は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

Y_3 および Y_4 は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なっているもよい。

いてもよい。

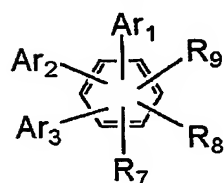
また、 Y_3 および Y_4 、または X_3 、 Y_3 および Y_4 は、互いに結合して環を形成していても良い。

$R_3 \sim R_6$ は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

p 、 q はそれぞれ1以上の整数で、 $p+q$ は2～10の整数である。）

【請求項5】 前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が、下記一般式〔3〕で示される化合物を少なくとも1種類含有することを特徴とする請求項3または4に記載の有機発光素子。

【化5】

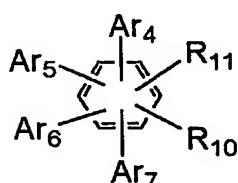


〔3〕

($Ar_1 \sim Ar_3$ は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよく、またいずれか一つは水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、置換あるいは未置換のアラルキル基であってもよい。 $R_7 \sim R_9$ は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基及びアラルキル基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【請求項6】 前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が、下記一般式〔4〕で示される化合物を少なくとも1種類含有することを特徴とする請求項3または4に記載の有機発光素子。

【化6】

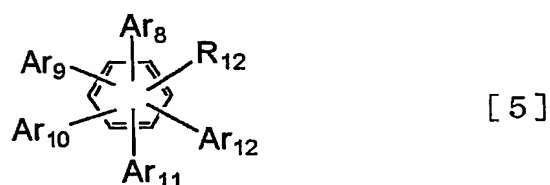


〔4〕

(Ar₄~Ar₇は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。R₁₀、R₁₁は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基及びアラルキル基、置換アミノ基、並びにまたはシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【請求項7】 前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が、下記一般式〔5〕で示される化合物を少なくとも1種類含有することを特徴とする請求項3または4に記載の有機発光素子。

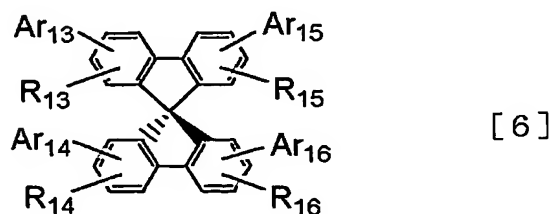
【化7】



(Ar₈~Ar₁₂は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。R₁₂は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【請求項8】 前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が、下記一般式〔6〕で示される化合物を少なくとも1種類含有することを特徴とする請求項3または4に記載の有機発光素子。

【化8】

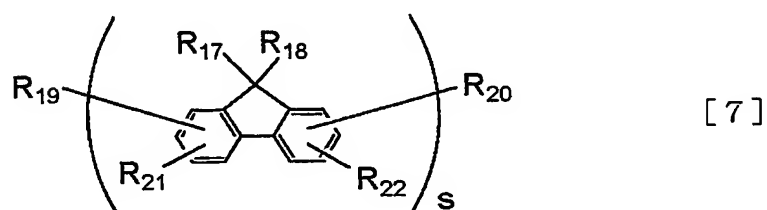


(Ar₁₃~Ar₁₆は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよく、またいずれか3つまでは、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、置換あるいは未置換のアラルキル基であってもよい。R₁₃~R₁₆は、水素原子、ハロゲン基

、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【請求項 9】 前記一般式 [1] または [2] で示される化合物を含む層が、下記一般式 [7] で示される化合物を少なくとも 1 種類含有することを特徴とする請求項 3 または 4 に記載の有機発光素子。

【化 9】



(R₁₇およびR₁₈は、水素原子、並びに置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、異なるフルオレン基に結合するR₁₉同士、R₂₀同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合するR₁₉およびR₂₀は、同じであっても異なってもよい。R₁₉～R₂₂は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアルコキシ基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【請求項 10】 前記一般式 [1] または [2] で示される化合物を含む層が発光層であることを特徴とする請求項 3～9 のいずれかに記載の有機発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、モノアミノフルオレン化合物及び有機発光素子に関し、詳しくは有機化合物からなる薄膜に電界を印加することにより光を放出する素子に関する。

【0002】

【従来の技術】

有機発光素子は、陽極と陰極間に蛍光性有機化合物を含む薄膜を挟持させて、各電極から電子およびホール（正孔）を注入することにより、蛍光性化合物の励

起子を生成させ、この励起子が基底状態にもどる際に放射される光を利用する素子である。

【0003】

1987年コダック社の研究 (Appl. Phys. Lett. 51, 913 (1987)) では、陽極にITO、陰極にマグネシウム銀の合金をそれぞれ用い、電子輸送材料および発光材料としてアルミニウムキノリノール錯体を用い、ホール輸送材料にトリフェニルアミン誘導体を用いた機能分離型2層構成の素子で、10V程度の印加電圧において1000 cd/m²程度の発光が報告されている。関連の特許としては、米国特許4,539,507号、米国特許4,720,432号、米国特許4,885,211号等が挙げられる。

【0004】

また、蛍光性有機化合物の種類を変えることにより、紫外から赤外までの発光が可能であり、最近では様々な化合物の研究が活発に行われている。例えば、米国特許5,151,629号、米国特許5,409,783号、米国特許5,382,477号、特開平2-247278号公報、特開平3-255190号公報、特開平5-202356号公報、特開平9-202878号公報、特開平9-227576号公報等に記載されている。

【0005】

さらに、上記のような低分子材料を用いた有機発光素子の他にも、共役系高分子を用いた有機発光素子が、ケンブリッジ大学のグループ (Nature, 347, 539 (1990)) により報告されている。この報告ではポリフェニレンビニレン (PPV) を塗工系で成膜することにより、単層で発光を確認している。共役系高分子を用いた有機発光素子の関連特許としては、米国特許5,247,190号、米国特許5,514,878号、米国特許5,672,678号、特開平4-145192号公報、特開平5-247460号公報等が挙げられる。

【0006】

このように有機発光素子における最近の進歩は著しく、その特徴は低印加電圧で高輝度、発光波長の多様性、高速応答性、薄型、軽量の発光デバイス化が可能

であることから、広汎な用途への可能性を示唆している。

【0007】

しかしながら、長時間の使用による経時変化や酸素を含む雰囲気気体や湿気などによる劣化等の耐久性の面で未だ多くの問題がある。さらにフルカラーディスプレイ等への応用を考えた場合、現状では更なる高輝度の光出力あるいは高変換効率、高色純度の青、緑、赤色発光が必要である。

【0008】

例えば、特開2001-52868号公報には発光材料として、ジアミン化合物が開示されているが、高色純度（色度座標： x , $y=0.14-0.15$, $0.09-0.10$ ）の青色発光は得られていない。また、同様なジアミノ骨格を有する化合物を使用した例として、特開2001-196177号公報が開示されているが、正孔注入層として使用されており、発光層としての使用および発光色、効率等の発光特性に関しては開示されていない。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、このような従来技術の問題点を解決するためになされたものであり、新規なモノアミノ化合物を提供することを目的とする。

【0010】

また、極めて純度のよい発光色相を呈し、高効率で高輝度、高寿命の光出力を有する有機発光素子を提供することを目的とする。

【0011】

さらには製造が容易でかつ比較的安価に作成可能な有機発光素子を提供する事を目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】

本発明者等は、上述の課題を解決するために鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。

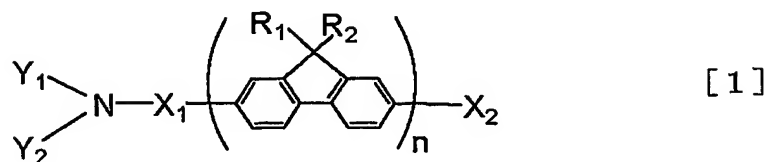
【0013】

すなわち本発明のモノアミノフルオレン化合物は、下記一般式〔1〕または〔

2] で示されることを特徴とする。

【0014】

【化10】



【0015】

(X_1 は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有するアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基、シリル基、カルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、直接結合でもよい。

【0016】

X_2 は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

【0017】

$Y_1 \sim Y_2$ は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

【0018】

また、 Y_1 および Y_2 、または X_1 、 Y_1 および Y_2 は、互いに結合して環を形成していても良い。

【0019】

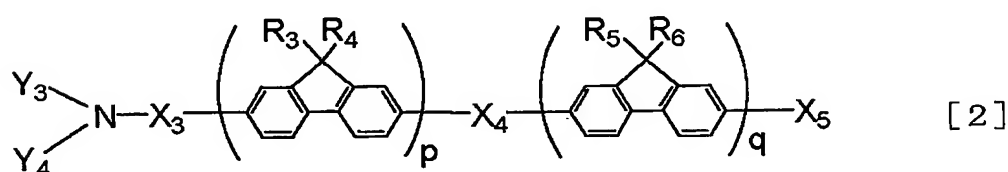
R_1 および R_2 は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なっているもよい。

【0020】

n は、 X_1 が直接結合で X_2 が水素原子の場合、2～10の整数であり、その他は1～10の整数である。）

【0021】

【化11】



【0022】

($X_3 \sim X_4$ は、置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アリーレン基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、未置換のカルボニル基、エーテル基及びチオエーテル基からなる群より選ばれた二価の基であり、同じであっても異なっているもよく、 X_3 は直接結合でもよい。

【0023】

X_5 は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基及びスルフィド基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。

【0024】

Y_3 および Y_4 は、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する置換あるいは未置換のアルキレン基、アラルキレン基、アルケニレン基、アミノ基及びシリル基、置換あるいは未置換のアリーレン基あるいは二価の複素環基からなる連結基を有する未置換のカルボニル基、エーテル基

及びチオエーテル基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

【0025】

また、 Y_3 および Y_4 、または X_3 、 Y_3 および Y_4 は、互いに結合して環を形成していても良い。

【0026】

$R_3 \sim R_6$ は、水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。

【0027】

p 、 q はそれぞれ1以上の整数で、 $p+q$ は2～10の整数である。）

また、本発明の有機発光素子は、陽極および陰極からなる一对の電極と、該一对の電極間に挟持された一層または複数層の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が上記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を少なくとも一種類含有することを特徴とする。

【0028】

【発明の実施の形態】

以下、本発明に関して詳細に説明する。

【0029】

まず、本発明のモノアミノフルオレン化合物について説明する。

【0030】

本発明のモノアミノフルオレン化合物は、上記一般式〔1〕または〔2〕で示される。

【0031】

本発明のモノアミノフルオレン化合物は、主に有機発光素子用材料として使用でき、発光用材料として使用する場合、それぞれ単層においても高色純度、高発光効率、高寿命素子を得ることができる。また、剛直な構造を有するフルオレンを分子主鎖に導入することにより、より半値幅の狭い発光スペクトル、すなわち

より色純度に優れた発光が得られる。さらに、ストークスシフトが抑えられることで、発光波長の移動を抑え、吸収を長波長側にもってこることも可能であり、ドーパント材料として用いる場合、相対的に長波長側に発光スペクトルを有するホスト材料の使用も可能となる。

【0032】

本発明のモノアミノフルオレン化合物は、それぞれ発光層においてドーパント材料、ホスト材料双方の目的で使用でき、高色純度、高発光効率、高寿命素子を得ることができ、特にドーパント材料として使用し、エネルギー移動を起こしやすい適切なホスト材料とのコンビネーションにより、高色純度な発光を保持し、かつより効率の高い素子を得ることができる。

【0033】

上記一般式 [1] ~ [2] における置換基の具体例を以下に示す。

【0034】

置換あるいは未置換の鎖状および環状のアルキル基としては、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*n*-ブチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-デシル基、*iso*-プロピル基、*iso*-ブチル基、*tert*-ブチル基、*tert*-オクチル基、トリフルオロメチル基、シクロヘキシル基、シクロヘキシルメチル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0035】

置換あるいは未置換のアラルキル基としては、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0036】

置換あるいは未置換のアリール基としては、フェニル基、4-メチルフェニル基、4-メトキシフェニル基、4-エチルフェニル基、4-フルオロフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、トリフェニルアミノ基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントラセニル基、フェナンスレリル基、ピレニル基、テトラセニル基、ペンタセニル基、フルオレニル基、トリフェニレニル基、ペリレニル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0037】

置換あるいは未置換の複素環基としては、ピロリル基、ピリジル基、ビピリジル基、メチルピリジル基、ターピロリル基、チエニル基、ターチエニル基、プロピルチエニル基、フリル基、キノリル基、カルバゾリル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基、チアゾリル基、チアジアゾリル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0038】

置換あるいは未置換のアルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、プロピレン基、i s o-プロピレン基、ブチレン基、t e r t-ブチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、シクロヘキシレン基、シクロヘキシルメチレン基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0039】

置換あるいは未置換のアラルキレン基としては、ベンジレン基、フェニルエチレン基、フェネチレン基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0040】

置換あるいは未置換のアリーレン基としては、フェニレン基、ビフェニレン基、2, 3, 5, 6-テトラフルオロフェニレン基、2, 5-ジメチルフェニレン基、ナフチレン基、アントラセニレン基、フェナンスレニレン基、テトラセニレン基、ペンタセニレン基、ペリレニレン基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0041】

置換あるいは未置換の二価の複素環基としては、フラニレン基、ピロリレン基、ピリジニレン基、ターピリジニレン基、チオフェニレン基、ターチオフェニレン基、オキサゾリレン基、チアゾリレン基、カルバゾリレン等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0042】

置換あるいは無置換のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基（2-プロペニル基）、1-プロペニル基、i s o-プロペニル基、2-ブテニル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0043】

置換または未置換のアミノ基としては、アミノ基、メチルアミノ基、エチルアミノ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ベンジルアミノ基、メチルベンジルアミノ基、ジベンジルアミノ基、アニリノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルトリルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジアニソリルアミノ基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0044】

置換または未置換のカルボニル基としては、アセチル基、プロピオニル基、イソブチリル基、メタクリロイル基、ベンゾイル基、ナフトイル基、アントライル基、トルオイル基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0045】

置換あるいは未置換のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、2-エチルーオクチルオキシ基、フェノキシ基、4-ブチルフェノキシ基、ベンジルオキシ基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0046】

置換あるいは未置換のスルフィド基としては、メチルスルフィド基、エチルスルフィド基、フェニルスルフィド基、4-メチルフェニルスルフィド基等が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0047】

上記置換基が有しても良い置換基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、iso-プロピル基、tert-ブチル基、オクチル基、ベンジル基、フェネチル基等のアルキル基、アラルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、2-エチルーオクチルオキシ基、フェノキシ基、4-ブチルフェノキシ基、ベンジルオキシ基等のアルコキシ基、フェニル基、4-メチルフェニル基、4-エチルフェニル基、3-クロロフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、トリフェニルアミノ基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アンスリル基、フェナンスリル基、ピレニル基等のアリール基、ピリジル基、ビピリジル基、

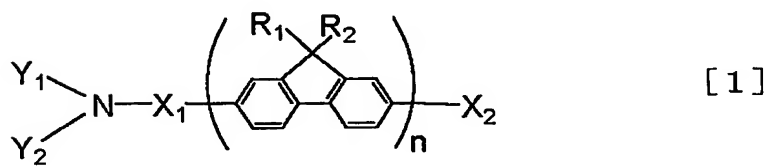
メチルピリジル基、チエニル基、ターチエニル基、プロピルチエニル基、フリル基、キノリル基、カルバゾリル基、N-エチルカルバゾリル基等の複素環基、ハロゲン基、シアノ基、ニトロ基が挙げられるが、もちろんこれらに限定されるものではない。

【0048】

次に一般式〔1〕および〔2〕で示される化合物についてその代表例を挙げる。ただし、これらの化合物に限定されるものではない。


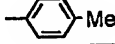

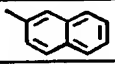
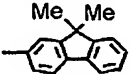
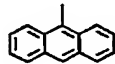
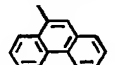
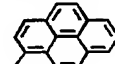
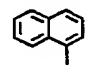


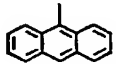


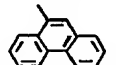


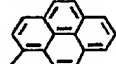









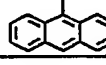

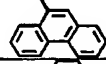

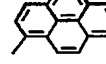


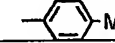
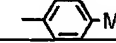
【0049】

【化12】



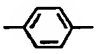
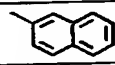

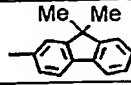
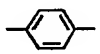

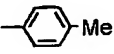
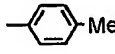
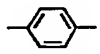
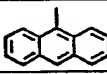
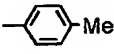
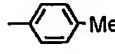
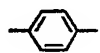
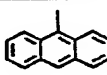
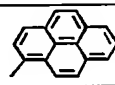
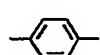
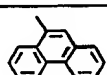
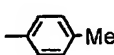
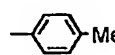
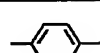
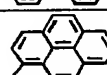
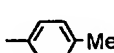
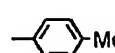
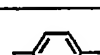
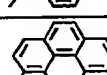
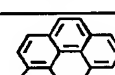
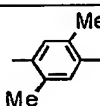
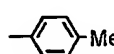
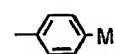
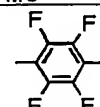
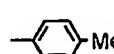
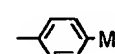
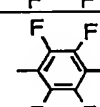

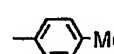
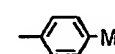
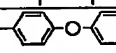
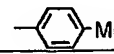
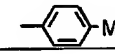

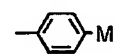
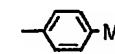

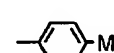
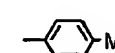


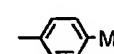
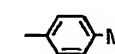
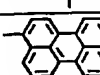
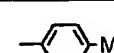
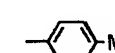
【0050】

【表 1】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
1	1	Me	直接結合	Ph	Ph	Ph
2	1	Me	直接結合	Ph		
3	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
4	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
5	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
6	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
7	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
8	1	Me	直接結合	Ph	Ph	
9	1	Me	直接結合			
10	1	Me	直接結合			
11	1	Me	直接結合			
12	1	Me	直接結合			
13	1	Me		H	Ph	Ph
14	1	Me		H		
15	1	Me		H	Ph	
16	1	Me		H	Ph	
17	1	Me		H	Ph	
18	1	Me		H	Ph	
19	1	Me		Ph	Ph	Ph
20	1	Me		Ph		

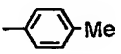

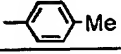

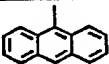
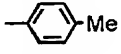



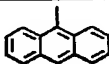


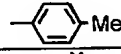
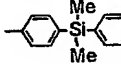

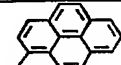

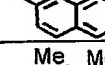
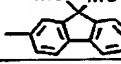
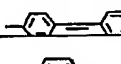
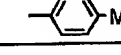
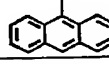
【0051】

【表 2】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
21	1	Me		Ph	Ph	
22	1	Me		Ph	Ph	
23	1	Me				
24	1	Me				
25	1	Me			Ph	
26	1	Me				
27	1	Me				
28	1	Me			Ph	
29	1	Me		H		
30	1	Me		H		
31	1	Me				
32	1	Me		H		
33	1	Me		H		
34	1	Me		H		
35	1	Me				
36	1	Me		H		

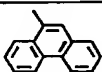
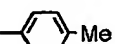

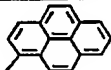
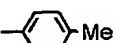



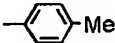


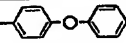
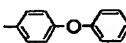





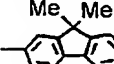

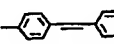

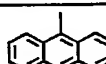

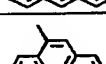

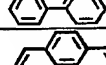


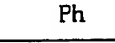
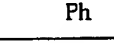

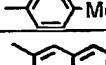

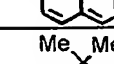




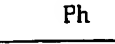


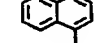
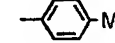
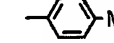

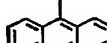

【0052】

【表 3】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
37	1	Me		H		
38	1	n-Bu		H		
39	1	n-Bu				
40	1	Ph		H		
41	1	Ph				
42	2	Me	直接結合	H	Ph	Ph
43	2	Me	直接結合	H		
44	2	Me	直接結合	H		
45	2	Me	直接結合	H	Ph	
46	2	Me	直接結合	H	Ph	
47	2	Me	直接結合	H	Ph	
48	2	Me	直接結合	H	Ph	
49	2	Me	直接結合	H	Ph	
50	2	Me	直接結合	H	Ph	
51	2	Me	直接結合	Ph		
52	2	Me	直接結合	Ph	Ph	
53	2	Me	直接結合	Ph	Ph	
54	2	Me	直接結合	Ph	Ph	
55	2	Me	直接結合			
56	2	Me	直接結合			












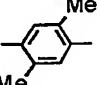


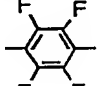


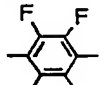



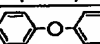


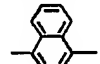


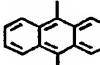


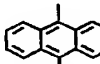






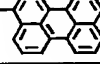





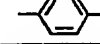






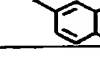
【0053】

【表 4】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
57	2	Me	直接結合			
58	2	Me	直接結合			
59	2	Me		H	Ph	Ph
60	2	Me		H		
61	2	Me		H		
62	2	Me		H	Ph	
63	2	Me		H	Ph	
64	2	Me		H	Ph	
65	2	Me		H	Ph	
66	2	Me		H	Ph	
67	2	Me		H	Ph	
68	2	Me		H	Ph	
69	2	Me		Ph	Ph	Ph
70	2	Me		Ph		
71	2	Me		Ph	Ph	
72	2	Me		Ph	Ph	
73	2	Me		Ph	Ph	
74	2	Me				
75	2	Me				
76	2	Me			Ph	

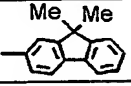
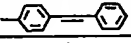
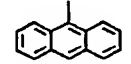
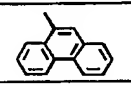
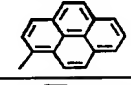
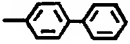

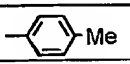
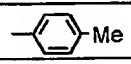
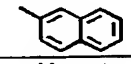
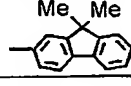
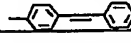
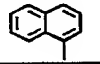
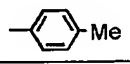
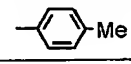
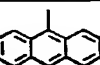
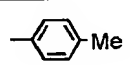
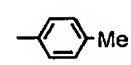
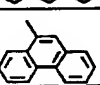
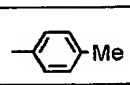
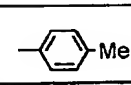
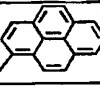
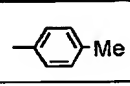
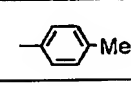

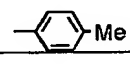


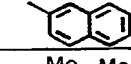

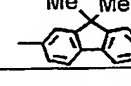

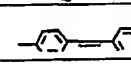

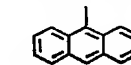

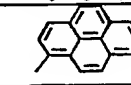
【0054】

【表 5】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
77	2	Me				
78	2	Me				
79	2	Me			Ph	
80	2	Me		H		
81	2	Me		H		
82	2	Me				
83	2	Me		H		
84	2	Me		H		
85	2	Me		H		
86	2	Me				
87	2	Me		H		
88	2	Me		H		
89	2	n-Bu		H		
90	2	n-Bu				
91	3	Me	直接結合	H	Ph	Ph
92	3	Me	直接結合	H		
93	3	Me	直接結合	H	Ph	
94	3	Me	直接結合	H	Ph	








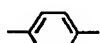






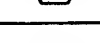









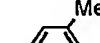


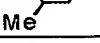



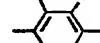


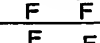


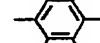


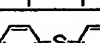






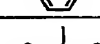


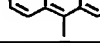


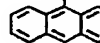



【0055】

【表 6】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
95	3	Me	直接結合	H	Ph	
96	3	Me	直接結合	H	Ph	
97	3	Me	直接結合	H	Ph	
98	3	Me	直接結合	H	Ph	
99	3	Me	直接結合	H	Ph	
100	3	Me	直接結合	H		
101	3	Me	直接結合	Ph		
102	3	Me	直接結合	Ph	Ph	
103	3	Me	直接結合	Ph	Ph	
104	3	Me	直接結合	Ph	Ph	
105	3	Me	直接結合			
106	3	Me	直接結合			
107	3	Me	直接結合			
108	3	Me	直接結合			
109	3	Me		H		
110	3	Me		H	Ph	
111	3	Me		H	Ph	
112	3	Me		H	Ph	
113	3	Me		H	Ph	
114	3	Me		H	Ph	





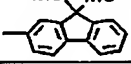
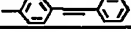






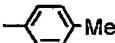






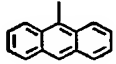



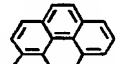



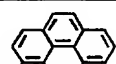

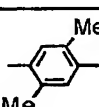


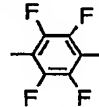





【0056】

【表 7】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
115	3	Me		Ph		
116	3	Me				
117	3	Me				
118	3	Me			Ph	
119	3	Me				
120	3	Me			Ph	
121	3	Me		H		
122	3	Me		H		
123	3	Me				
124	3	Me		H		
125	3	Me		H		
126	3	Me		H		
127	3	Me				
128	3	Me		H		
129	3	Me		H		
130	3	n-Bu		H		
131	3	n-Bu				

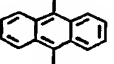

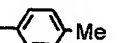
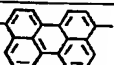

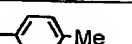
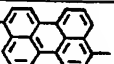

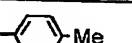


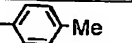
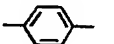
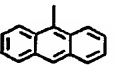

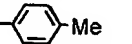
【0057】

【表 8】

	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
132	3	Me	直接結合	H	Ph	Ph
133	3	Me	直接結合	H		
134	3	Me	直接結合	H	Ph	
135	3	Me	直接結合	H	Ph	
136	3	Me	直接結合	H	Ph	
137	3	Me	直接結合	H	Ph	
138	3	Me	直接結合	H	Ph	
139	3	Me	直接結合	H	Ph	
140	3	Me	直接結合	H	Ph	
141	3	Me	直接結合	H		
142	4	Me		H		
143	4	Me		H	Ph	
144	4	Me		H	Ph	
145	4	Me				
146	4	Me				
147	4	Me			Ph	
148	4	Me		H		
149	4	Me		H		
150	4	Me		H		

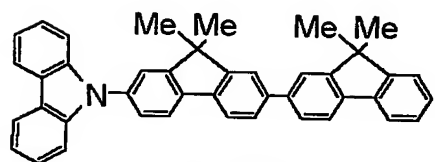
【0058】

【表 9】

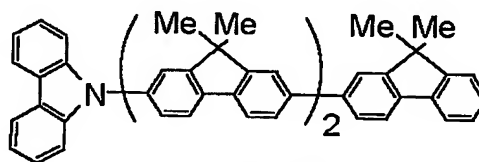
	n	R1, R2	X1	X2	Y1	Y2
151	4	Me		H		
152	4	Me		H		
153	4	Me		H		
154	4	n-Bu		H		
155	4	n-Bu				

【0059】

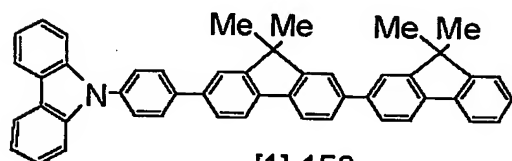
【化13】



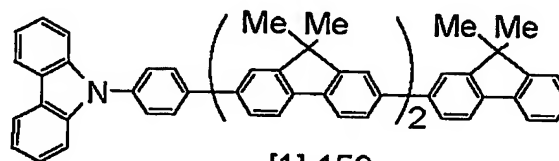
[1]-156



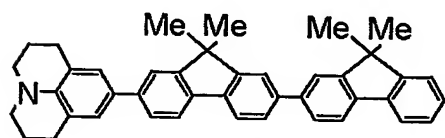
[1]-157



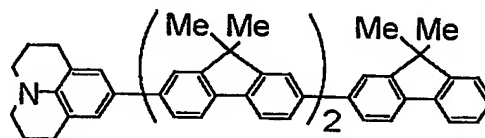
[1]-158



[1]-159



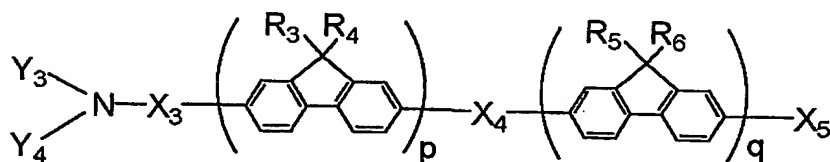
[1]-160



[1]-161

【0060】

【化14】



[2]

【0061】

【表 10】

	p, q	R3, R4	R5, R6	X3	X4	X5	Y3	Y4
1	1, 1	Me	Me	単結合		H	Me	Ph
2	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	Ph
3	1, 1	Me	Me	単結合		H		
4	1, 1	Me	n-Bu	単結合		H		
5	1, 1	n-Bu	n-Bu	単結合		H		
6	1, 1	Me	Me	単結合		H		
7	1, 1	Me	Me	単結合		H		
8	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
9	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
10	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
11	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
12	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
13	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
14	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
15	1, 1	Me	Me	単結合		H		
16	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
17	1, 1	Me	Me	単結合		H		
18	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
19	1, 1	Me	Me	単結合		H		
20	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
21	1, 1	Me	Me	単結合		H		

【0062】

【表 11】

	p, q	R3, R4	R5, R6	X3	X4	X5	Y3	Y4
22	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
23	1, 1	Me	Me	単結合		H		
24	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
25	1, 1	Me	Me	単結合		H		
26	1, 1	Me	Me	単結合		H		
27	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
28	1, 1	Me	Me	単結合		H		
29	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
30	1, 1	Me	Me	単結合		H		
31	1, 1	Me	Me	単結合		H	Ph	
32	1, 1	Me	Me	単結合		H		
33	1, 1	Me	Me	単結合		H		
34	1, 2	Me	Me	単結合		H		
35	1, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
36	1, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
37	1, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
38	1, 2	Me	Me	単結合		H		
39	1, 2	Me	Me	単結合		H		
40	1, 1	Me	Me			H		
41	1, 1	Me	Me			H		
42	1, 1	Me	Me			H		


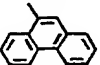



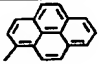















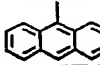




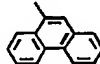



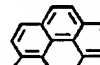































【0063】

【表 12】

	p, q	R3, R4	R5, R6	X3	X4	X5	Y3	Y4
43	1, 1	Me	Me			H		
44	1, 1	Me	n-Bu			H		
45	1, 1	n-Bu	n-Bu			H		
46	1, 1	Me	Me			H		
47	1, 1	Me	Me			H		
48	1, 1	Me	Me			H		
49	1, 1	Me	Me			H		
50	1, 1	Me	Me			H		
51	1, 1	Me	Me			H		
52	1, 1	Me	Me			H		
53	1, 1	Me	Me			H		
54	1, 1	Me	Me			H		
55	1, 1	Me	Me			H		
56	1, 1	Me	Me			H		
57	1, 2	Me	Me			H		
58	1, 2	Me	Me			H		
59	1, 1	Me	Me	単結合		Ph		
60	1, 1	Me	Me	単結合				
61	1, 1	Me	Me	単結合				
62	1, 1	Me	Me	単結合				

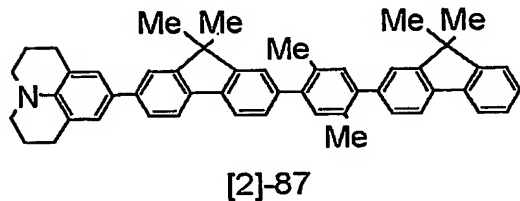
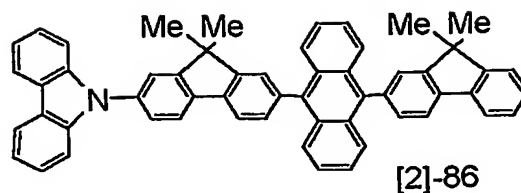
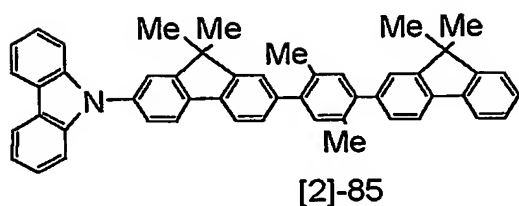
【0064】

【表 13】

	p, q	R3, R4	R5, R6	X3	X4	X5	Y3	Y4
63	1, 1	Me	Me	単結合				
64	1, 1	Me	Me	単結合				
65	1, 1	Me	Me			Ph		
66	1, 1	Me	Me					
67	1, 1	Me	Me					
68	1, 1	Me	Me					
69	1, 1	Me	Me					
70	1, 1	Me	Me					
71	2, 2	Me	Me	単結合		H	Me	Ph
72	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	Ph
73	2, 2	Me	Me	単結合		H		
74	2, 2	Me	n-Bu	単結合		H		
75	2, 2	n-Bu	n-Bu	単結合		H		
76	2, 2	Me	Me	単結合		H		
77	2, 2	Me	Me	単結合		H		
78	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
79	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
80	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
81	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
82	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
83	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	
84	2, 2	Me	Me	単結合		H	Ph	

【0065】

【化15】



【0066】

次に、本発明の有機発光素子について詳細に説明する。

【0067】

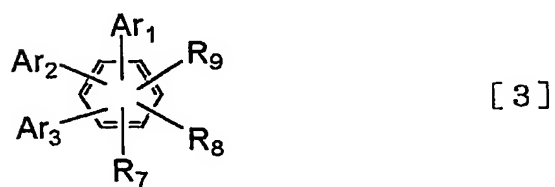
本発明の有機発光素子は、陽極及び陰極からなる一対の電極と、該一対の電極間に挟持された一または複数の有機化合物を含む層を少なくとも有する有機発光素子において、前記有機化合物を含む層の少なくとも一層が上記一般式〔1〕または〔2〕で示されるモノアミノフルオレン化合物の少なくとも一種を含有する。

【0068】

また、前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が、下記一般式〔3〕～〔7〕で示される化合物のいずれかを少なくとも1種類含有することが好ましく、前記一般式〔1〕または〔2〕で示される化合物を含む層が発光層であることがより好ましい。

【0069】

【化16】

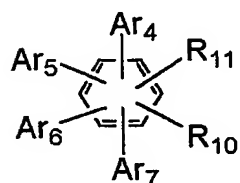


【0070】

(Ar₁~Ar₃は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよく、またいずれか一つは水素原子、置換あるいは未置換のアルキル基、置換あるいは未置換のアラルキル基であってもよい。R₇~R₉は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基及びアラルキル基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【0071】

【化17】



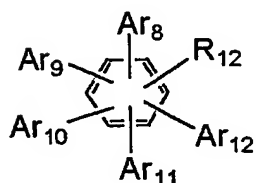
[4]

【0072】

(Ar₄~Ar₇は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。R₁₀、R₁₁は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基及びアラルキル基、置換アミノ基、並びにまたはシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【0073】

【化18】



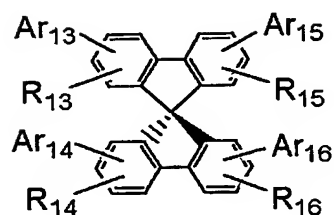
[5]

【0074】

(Ar₈~Ar₁₂は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよい。R₁₂は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【0075】

【化19】



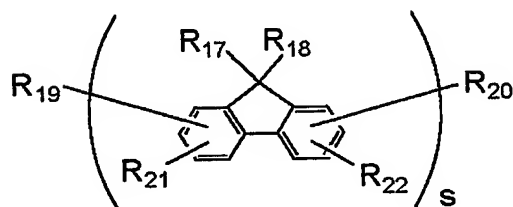
[6]

【0076】

(Ar₁₃~Ar₁₆は、置換あるいは無置換のアリール基及び複素環基からなる群より選ばれた基であり、同じであっても異なってもよく、またいずれか3つまでは、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、置換あるいは未置換のアラルキル基であってもよい。R₁₃~R₁₆は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基、アリール基及び複素環基、置換アミノ基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【0077】

【化20】



[7]

【0078】

(R₁₇およびR₁₈は、水素原子、並びに置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアリール基からなる群より選ばれた基であり、異なるフルオレン基に結合するR₁₉同士、R₂₀同士は、同じであっても異なってもよく、同じフルオレン基に結合するR₁₉およびR₂₀は、同じであっても異なってもよい。R₁₉~R₂₂は、水素原子、ハロゲン基、置換あるいは未置換のアルキル基、アラルキル基及びアルコキシ基、置換シリル基、並びにシアノ基からなる群より選ばれた基である。)

【0079】

一般式 [3] ~ [7] で示される化合物は、それぞれ発光層においてドーパン

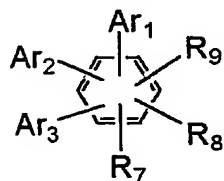
ト材料、ホスト材料双方の目的で使用でき、高色純度、高発光効率、高寿命素子を得ることができるが、ドーパント材料として一般式 [1] または [2] で示される化合物を使用し、それとエネルギー移動を起こしやすい適切なホスト材料、例えば一般式 [3] ~ [7] で示される化合物とのコンビネーションにより、高色純度な発光を保持し、かつより効率の高い素子を得ることができる。ホスト材料に対するドーパント濃度は、好ましくは 0.01 wt % ~ 50 wt %、より好ましくは 0.5 wt % ~ 10 wt % である。

【0080】

一般式 [3] ~ [7] における置換基の具体例は、上記一般式 [1] [2] における場合と同様である。以下に、一般式 [3] ~ [7] で示される化合物の代表例を挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0081】

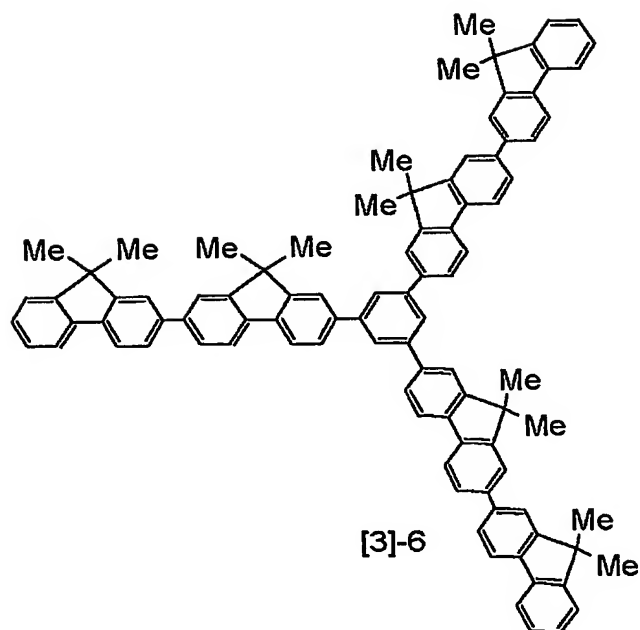
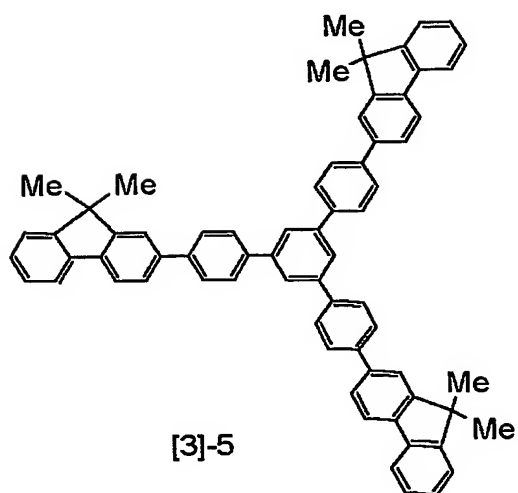
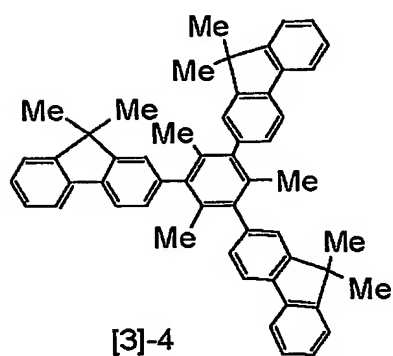
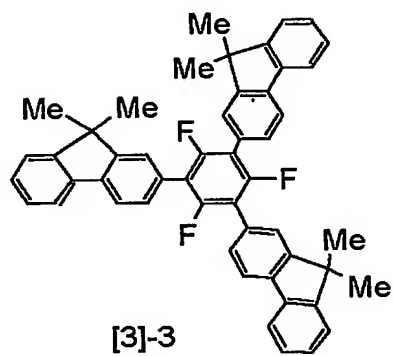
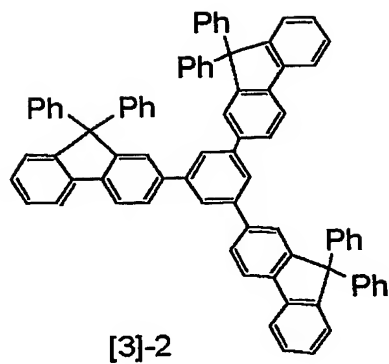
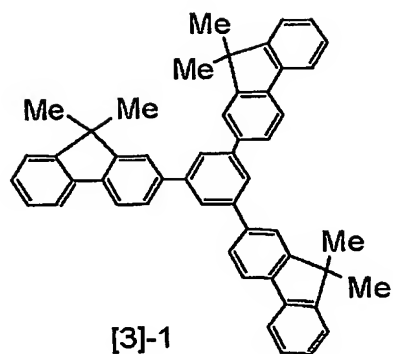
【化21】



[3]

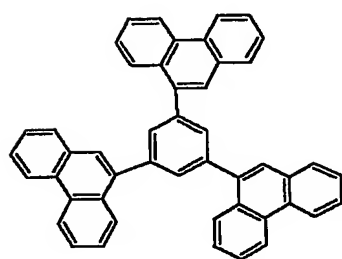
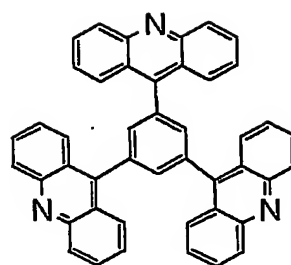
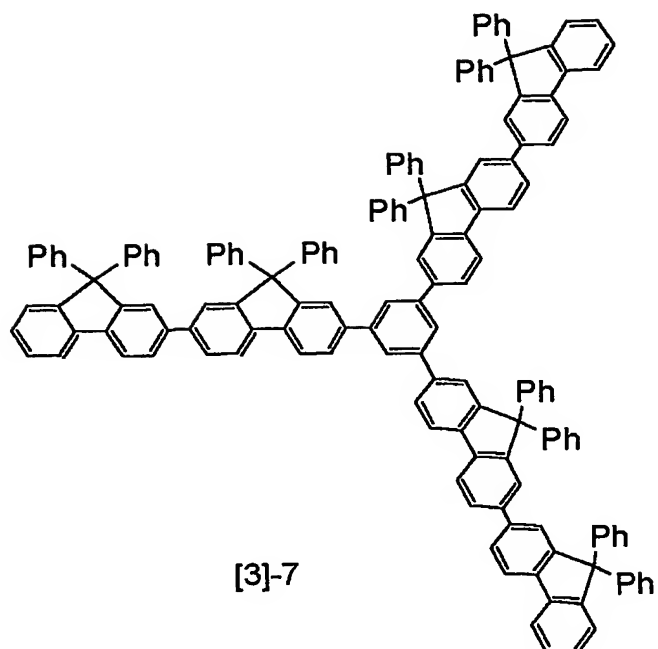
【0082】

【化 2 2】

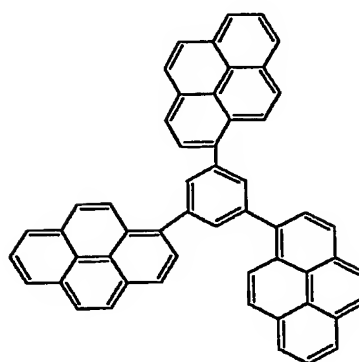


【0083】

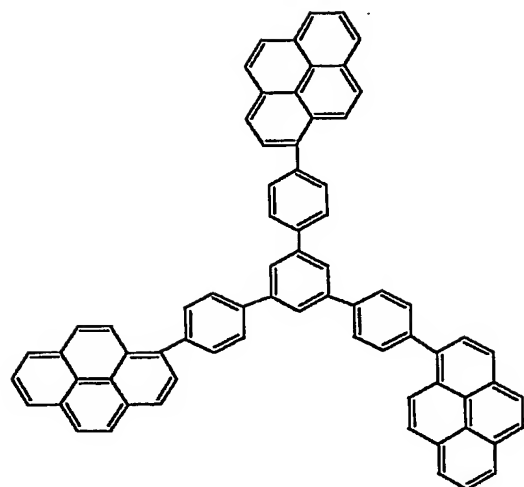
【化 23】



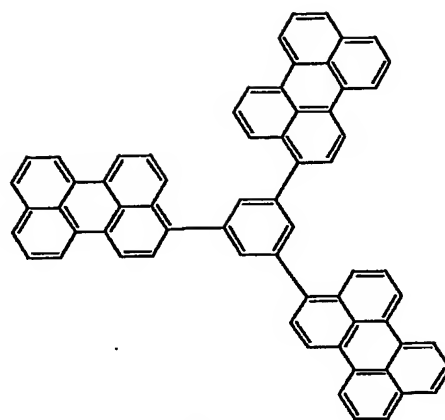
【0084】



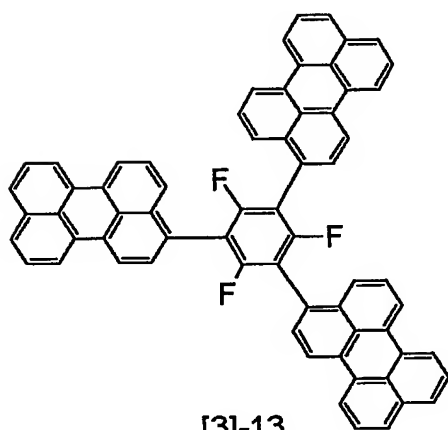
【化 24】



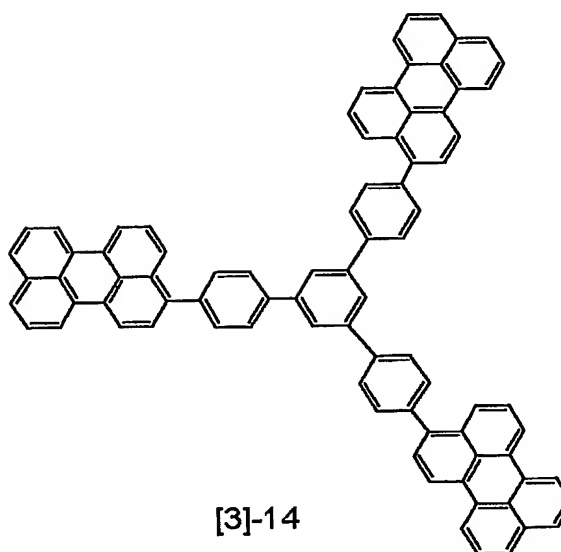
[3]-11



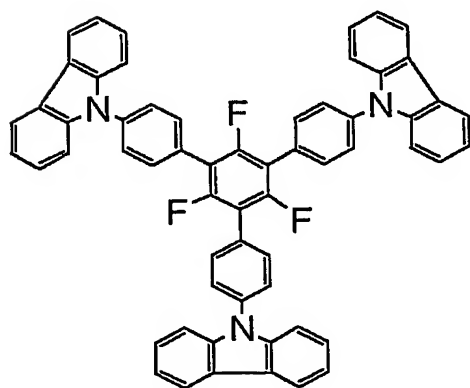
[3]-12



[3]-13



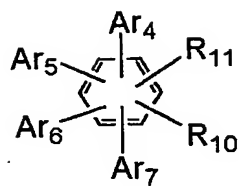
[3]-14



[3]-15

【0085】

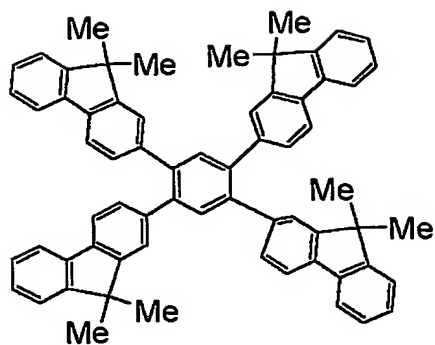
【化 2 5】



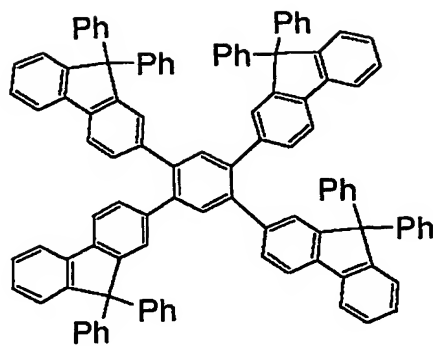
[4]

【 0 0 8 6 】

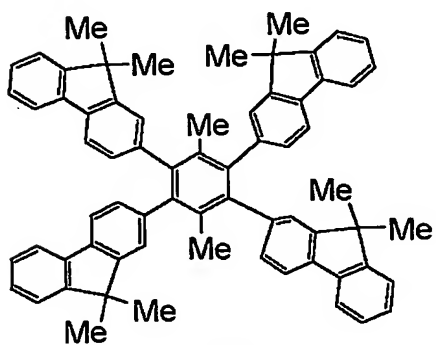
【化26】



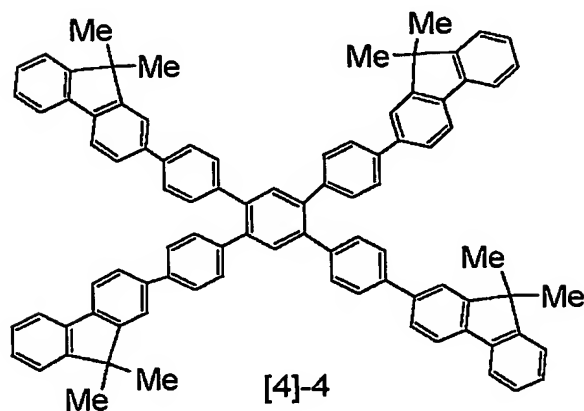
[4]-1



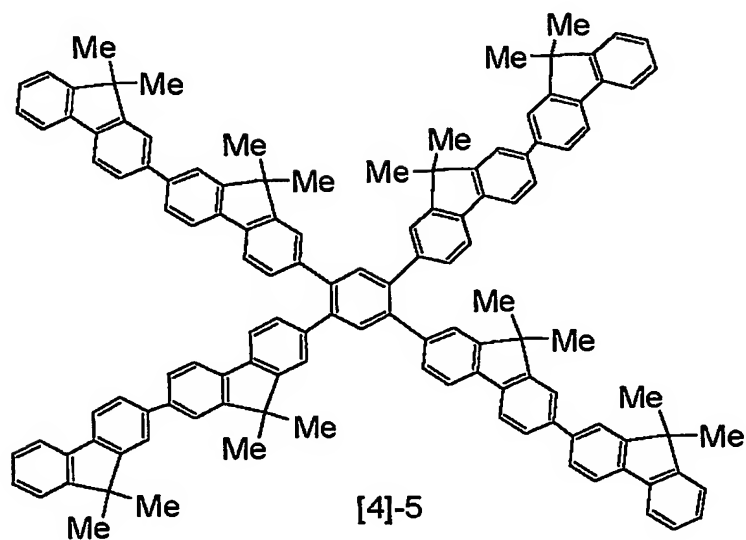
[4]-2



[4]-3



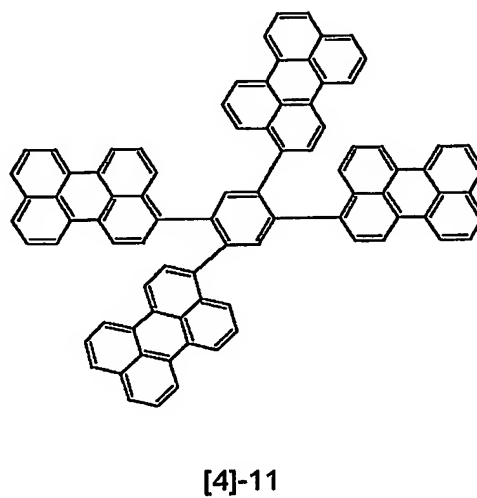
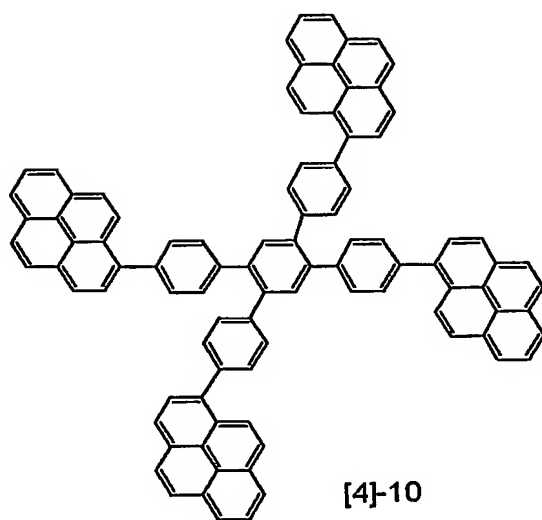
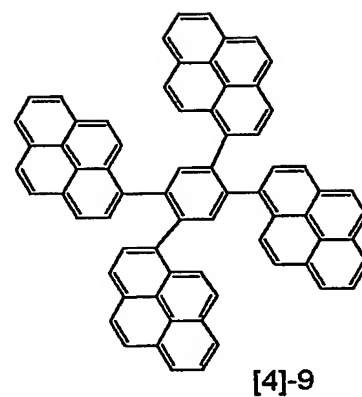
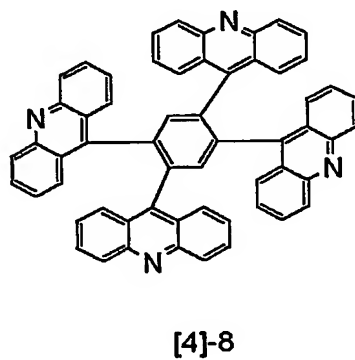
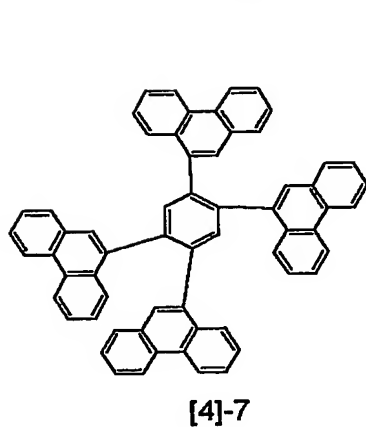
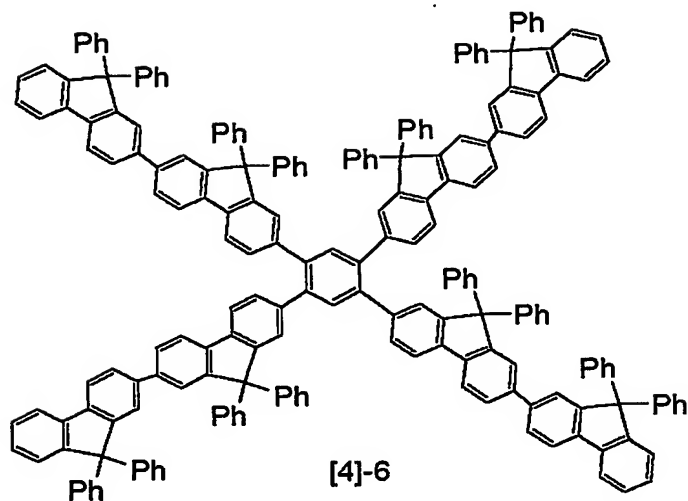
[4]-4



[4]-5

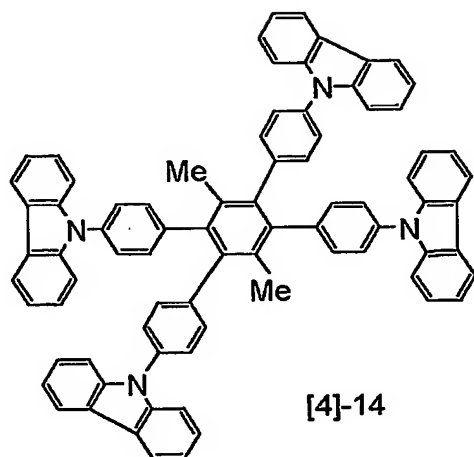
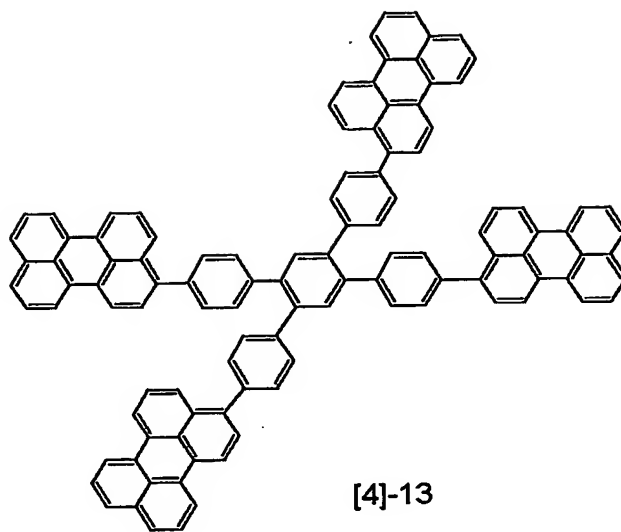
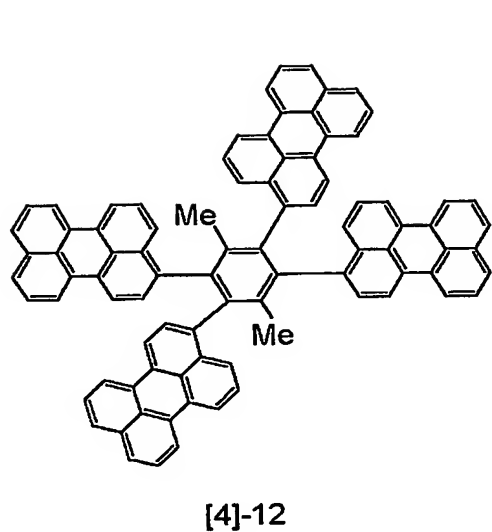
【0087】

【化 27】



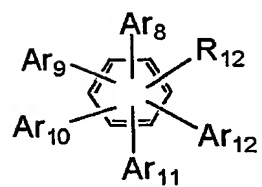
【0088】

【化 28】



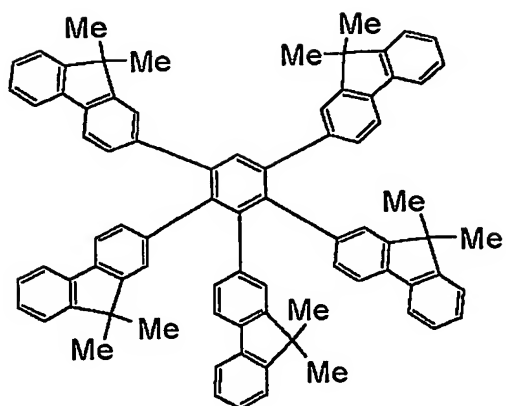
【0089】

【化 29】

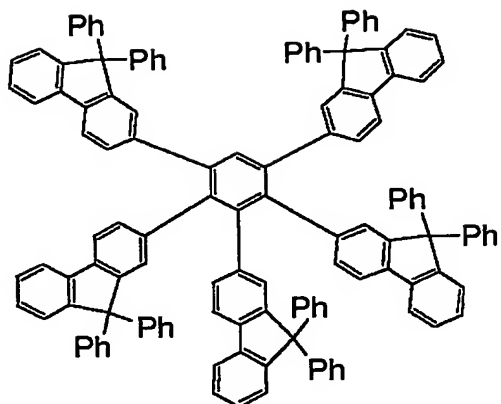


【0090】

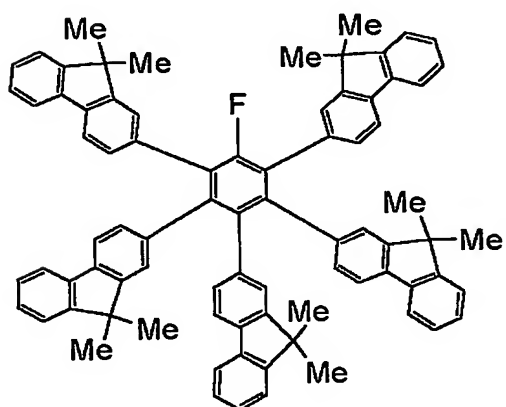
【化30】



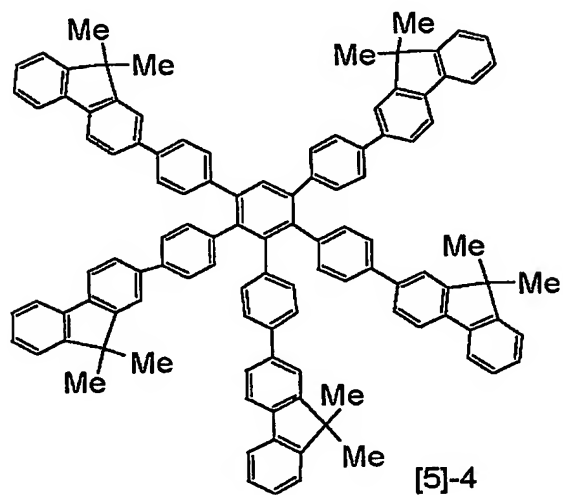
[5]-1



[5]-2



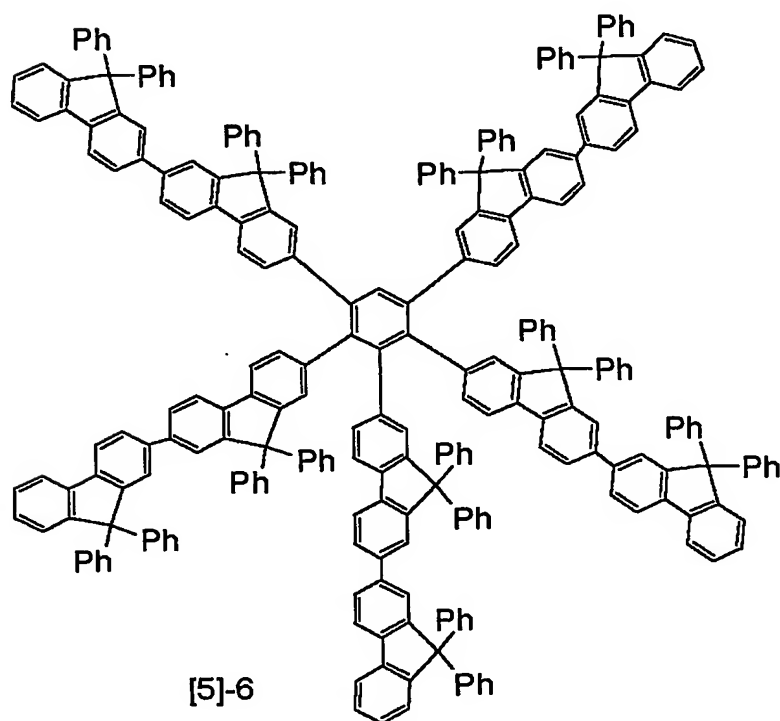
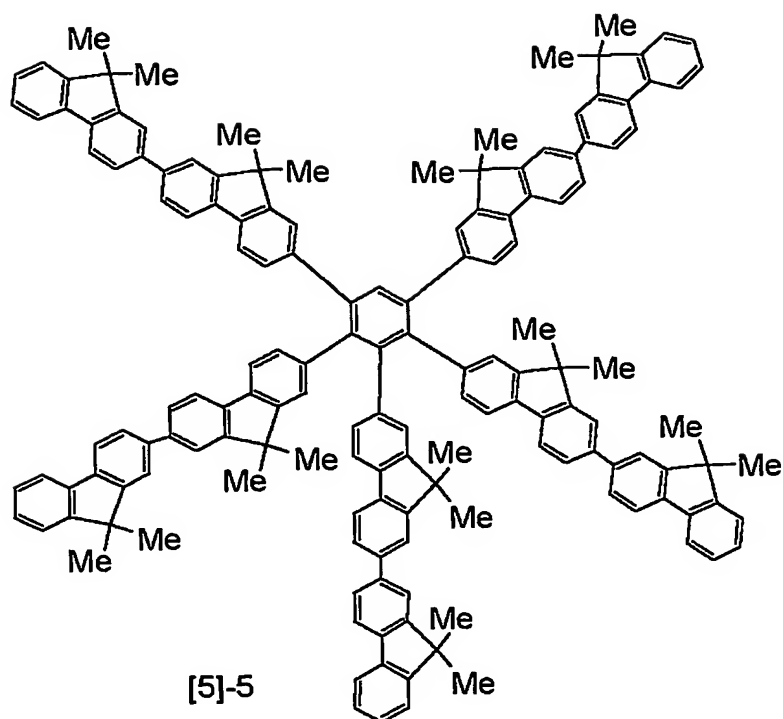
[5]-3



[5]-4

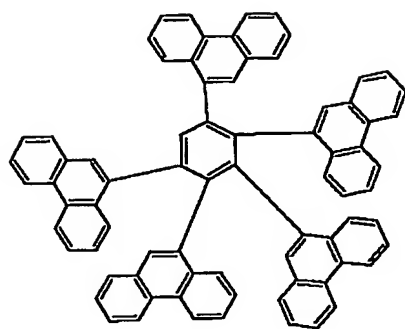
【0091】

【化31】

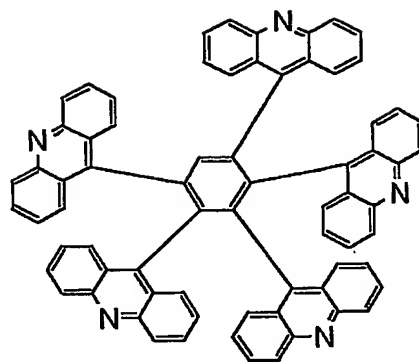


【0092】

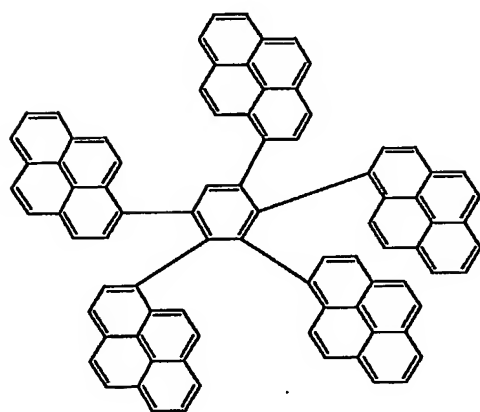
【化 3 2】



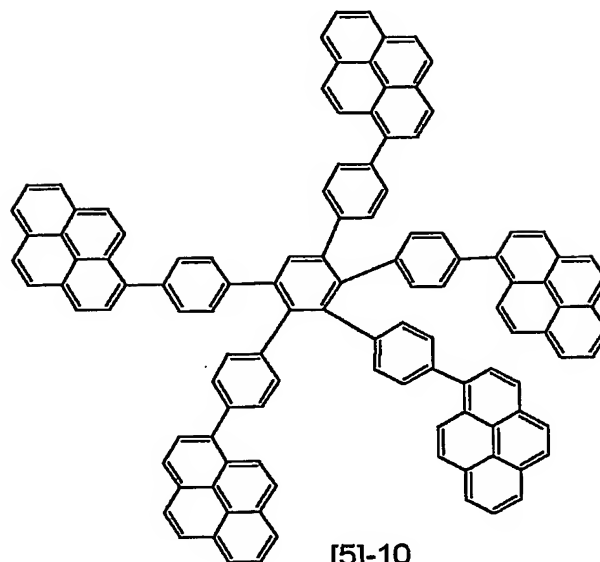
[5]-7



[5]-8



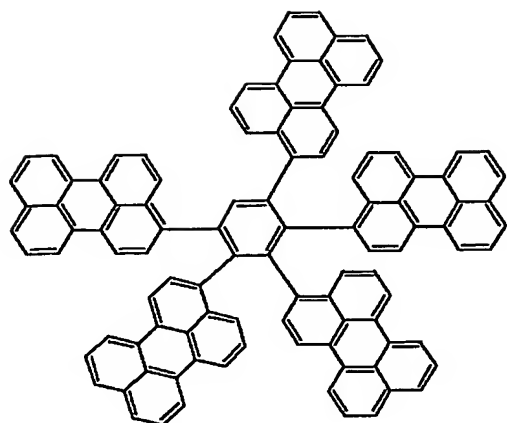
[5]-9



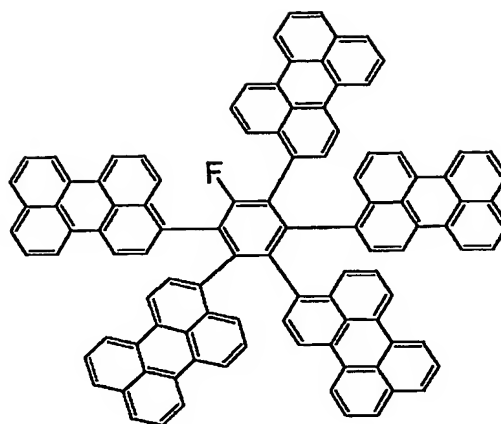
[5]-10

【 0 0 9 3 】

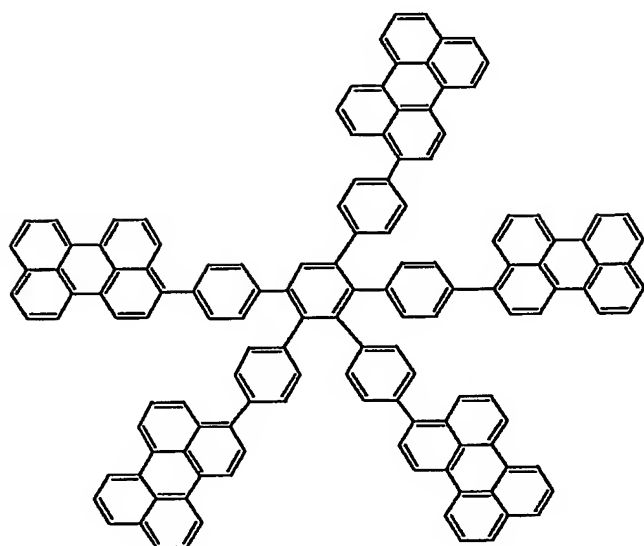
【化 3 3】



[5]-11

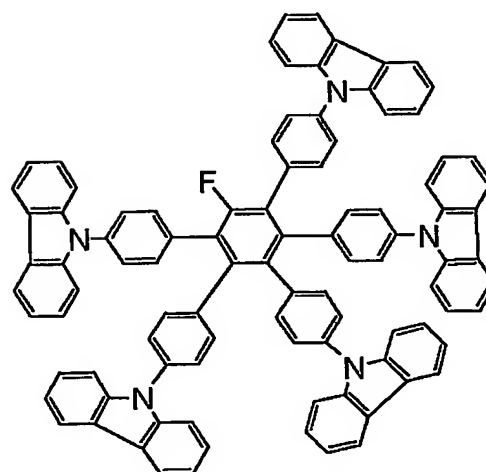


[5]-12



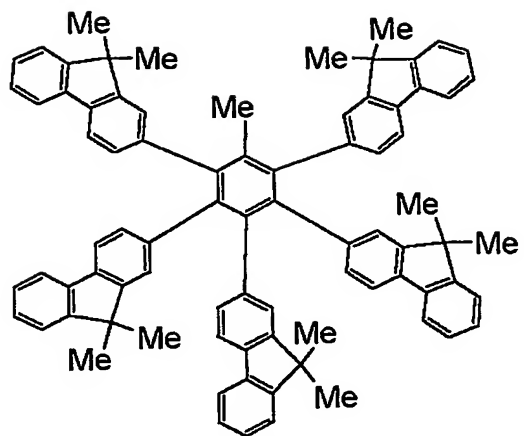
[5]-13

【0094】

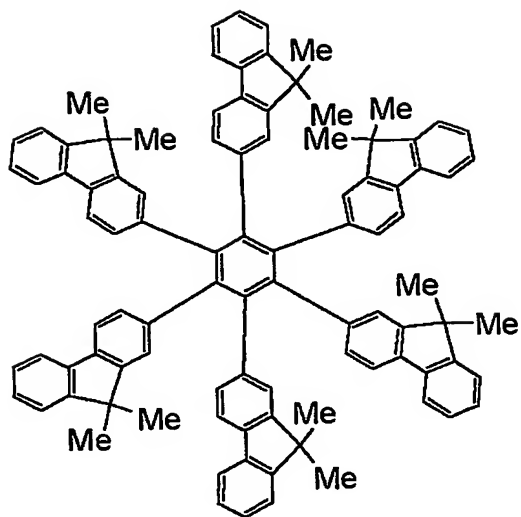


[5]-14

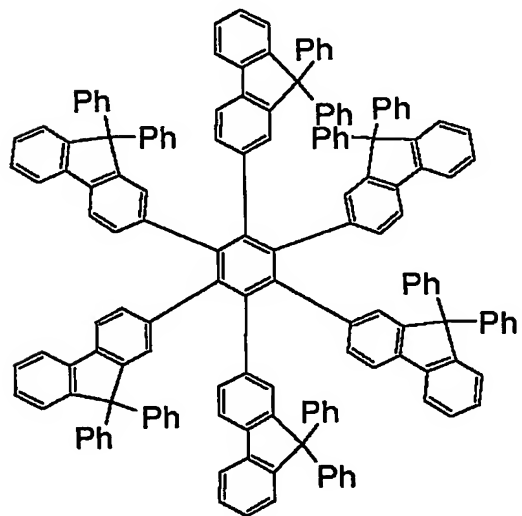
【化 3 4】



[5]-15

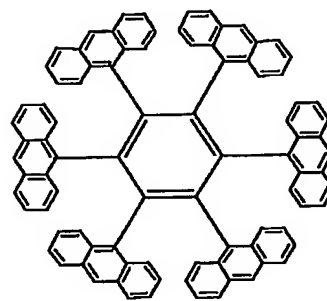


[5]-16



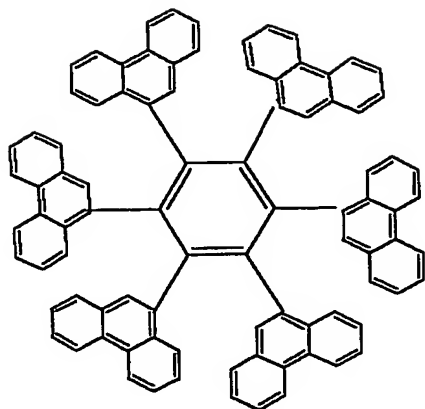
[5]-17

【0095】

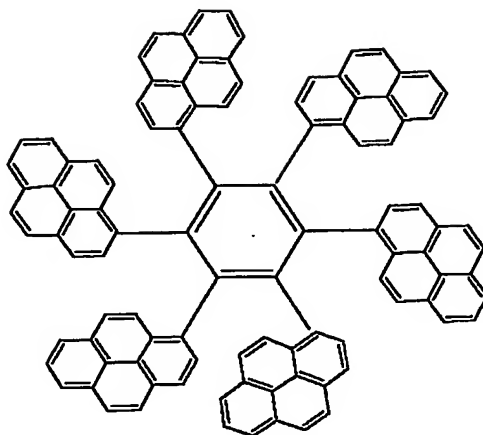


[5]-18

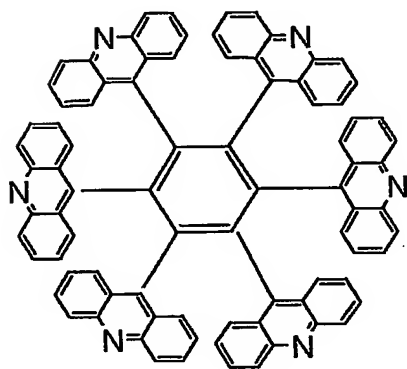
【化 3 5】



[5]-19



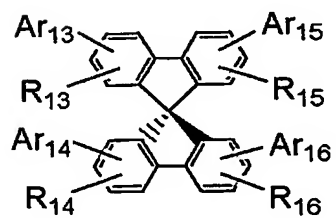
[5]-20



[5]-21

【0096】

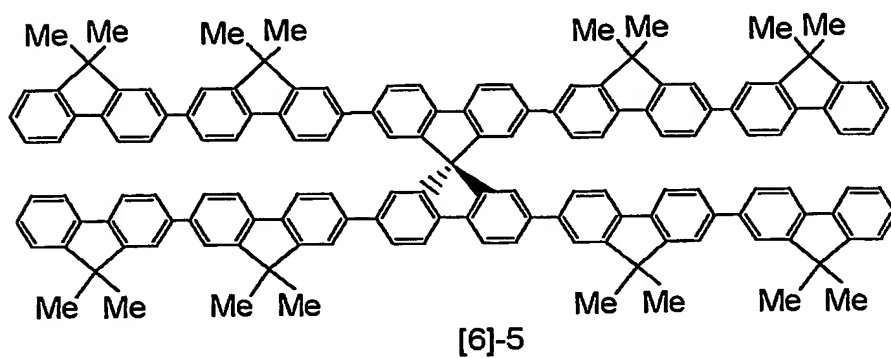
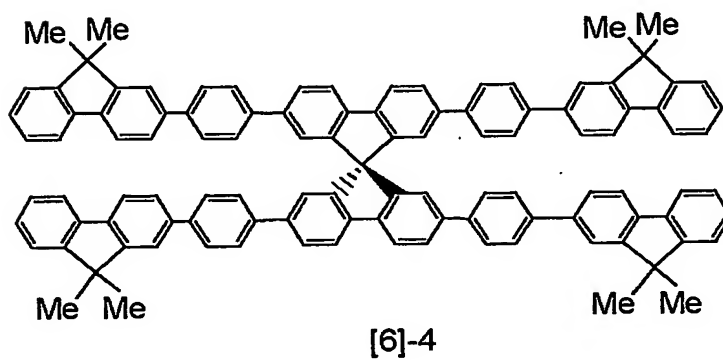
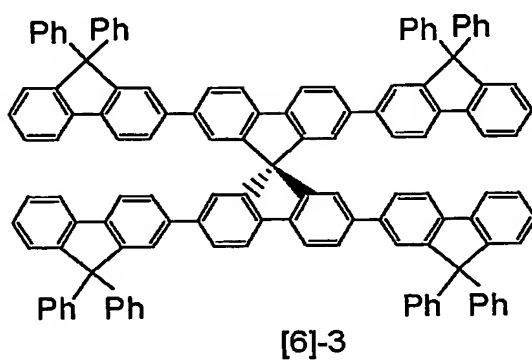
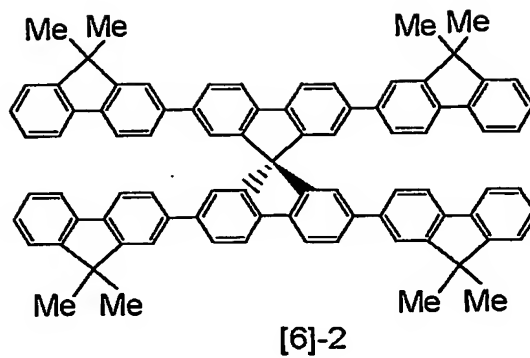
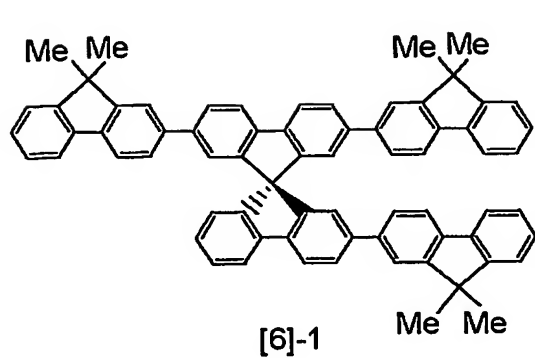
【化 3 6】



[6]

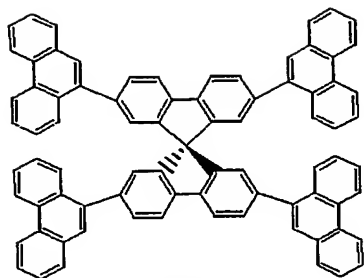
【0097】

【化 37】

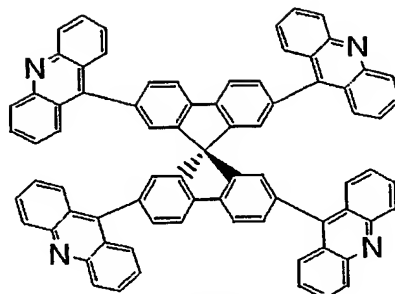


【0098】

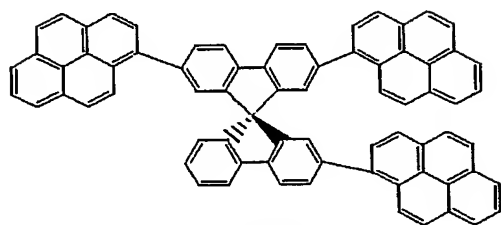
【化 38】



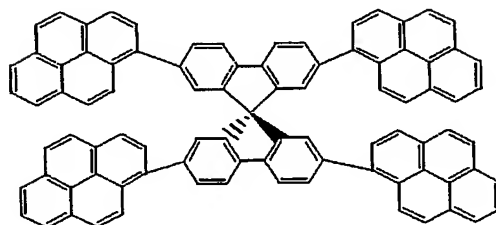
[6]-6



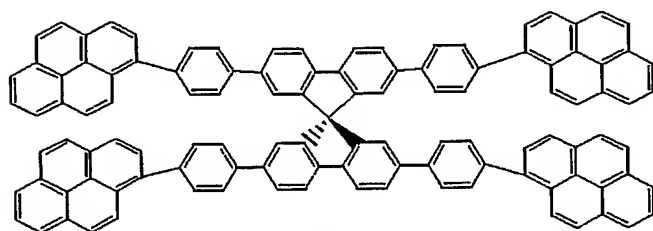
[6]-7



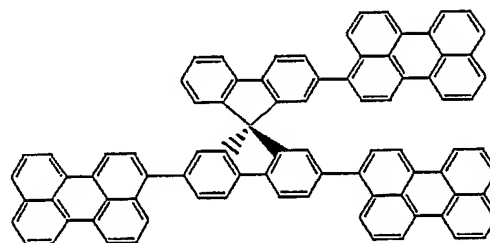
[6]-8



[6]-9



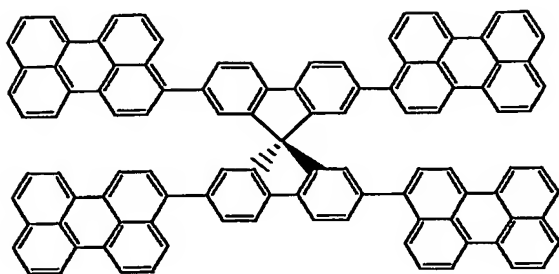
[6]-10



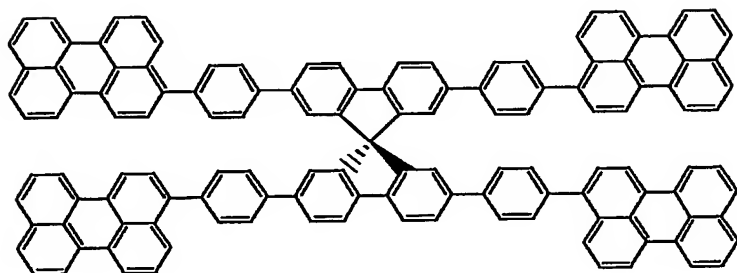
[6]-11

【0099】

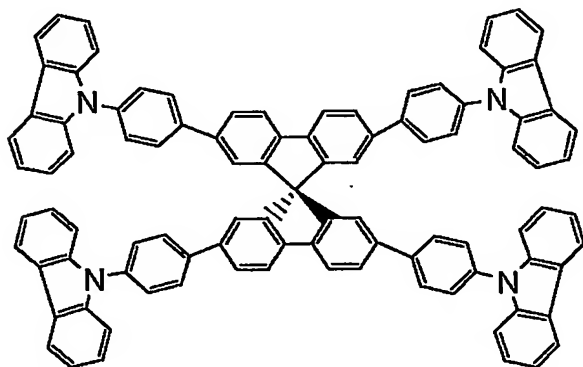
【化39】



[6]-12



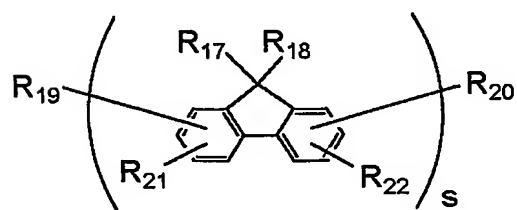
[6]-13



[6]-14

【0100】

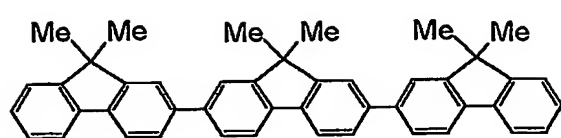
【化40】



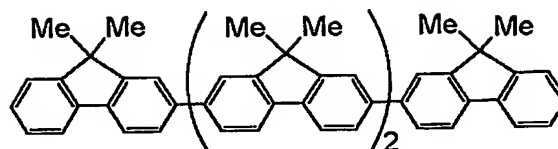
[7]

【0101】

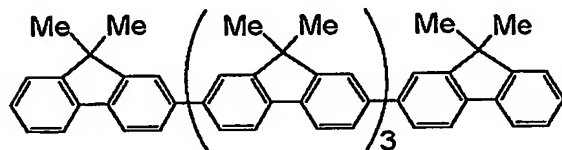
【化 4 1】



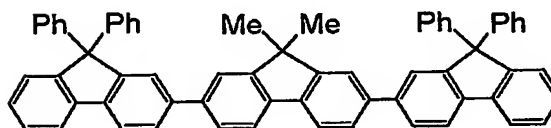
[7]-1



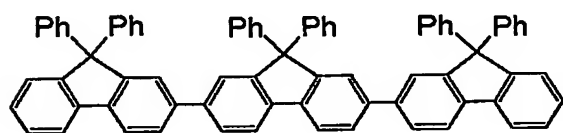
[7]-2



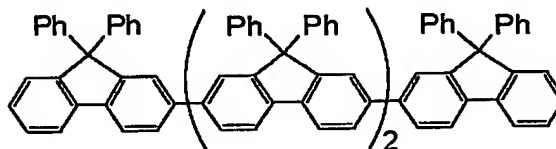
[7]-3



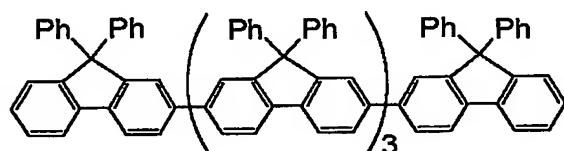
[7]-4



[7]-5



[7]-6



[7]-7

【0102】

図1～図6に本発明の有機発光素子の好ましい例を示す。

【0103】

図1は、本発明の有機発光素子の一例を示す断面図である。図1は、基板1上に、陽極2、発光層3及び陰極4を順次設けた構成のものである。ここで使用する発光素子は、それ自体でホール輸送能、エレクトロン輸送能及び発光性の性能を単一で有している場合や、それぞれの特性を有する化合物を混ぜて使う場合に有用である。

【0104】

図2は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図2は、基板1上に、陽極2、ホール輸送層5、電子輸送層6及び陰極4を順次設けた構

成のものである。この場合は、発光物質はホール輸送性かあるいは電子輸送性のいずれか、あるいは両方の機能を有している材料をそれぞれの層に用い、発光性の無い単なるホール輸送物質あるいは電子輸送物質と組み合わせて用いる場合に有用である。また、この場合、発光層 3 は、ホール輸送層 5 あるいは電子輸送層 6 のいずれかから成る。

【0105】

図 3 は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図 3 は、基板 1 上に、陽極 2、ホール輸送層 5、発光層 3、電子輸送層 6 及び陰極 4 を順次設けた構成のものである。これは、キャリア輸送と発光の機能を分離したものであり、ホール輸送性、電子輸送性、発光性の各特性を有した化合物と適時組み合わせて用いられ、極めて材料選択の自由度が増すとともに、発光波長を異にする種々の化合物が使用できるため、発光色相の多様化が可能になる。さらに、中央の発光層 3 に各キャリアあるいは励起子を有効に閉じこめて、発光効率の向上を図ることも可能になる。

【0106】

図 4 は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図 4 は、図 3 に対して、ホール注入層 7 を陽極 2 側に挿入した構成であり、陽極 2 とホール輸送層 5 の密着性改善あるいはホールの注入性改善に効果があり、低電圧化に効果的である。

【0107】

図 5 および図 6 は、本発明の有機発光素子における他の例を示す断面図である。図 5 および図 6 は、図 3 および図 4 に対してホールあるいは励起子（エキシトン）を陰極 4 側に抜けることを阻害する層（ホールブロッキング層 8）を、発光層 3、電子輸送層間 6 に挿入した構成である。イオン化ポテンシャルの非常に高い化合物をホールブロッキング層 8 として用いる事により、発光効率の向上に効果的な構成である。

【0108】

ただし、図 1～図 6 はあくまで、ごく基本的な素子構成であり、本発明の化合物を用いた有機発光素子の構成はこれらに限定されるものではない。例えば、電

極と有機層界面に絶縁性層を設ける、接着層あるいは干渉層を設ける、ホール輸送層がイオン化ポテンシャルの異なる 2 層から構成される、など多様な層構成をとることができる。

【0109】

本発明に用いられる一般式〔1〕または〔2〕で示されるモノアミノフルオレン化合物は、図 1～図 6 のいずれの形態でも使用することができる。

【0110】

特に、本発明の化合物を用いた有機層は、発光層、電子輸送層あるいはホール輸送層として有用であり、また真空蒸着法や溶液塗布法などによって形成した層は結晶化などが起こりにくく経時安定性に優れている。

【0111】

本発明は、特に発光層の構成成分として一般式〔1〕または〔2〕で示されるモノアミノフルオレン化合物を用いるものであるが、これまで知られているホール輸送性化合物、発光性化合物あるいは電子輸送性化合物などを必要に応じて一緒に使用することもできる。

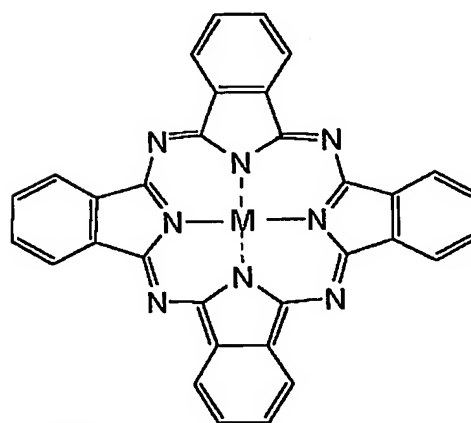
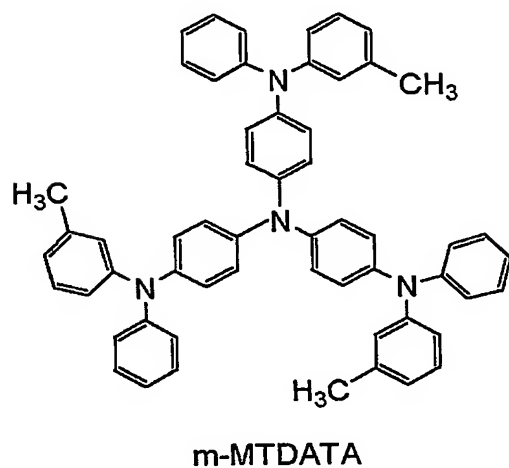
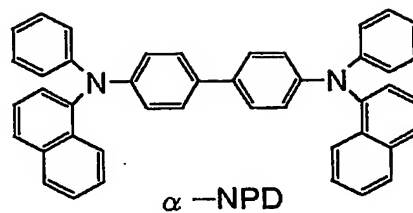
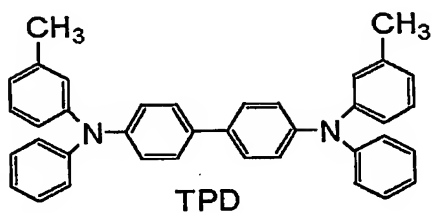
【0112】

以下にこれらの化合物例を挙げる。

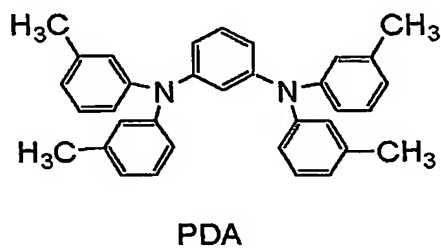
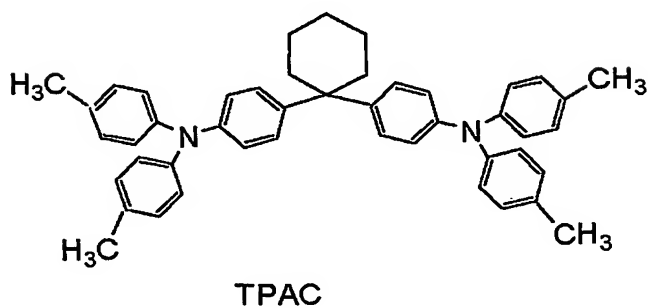
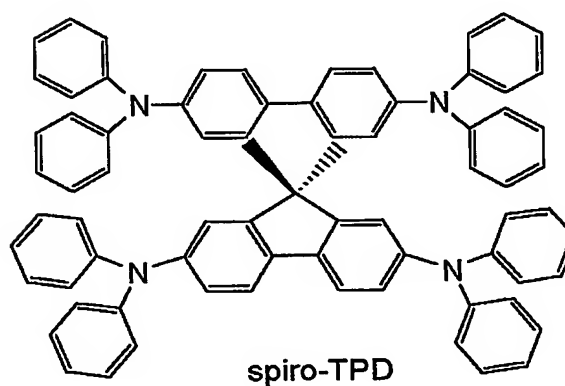
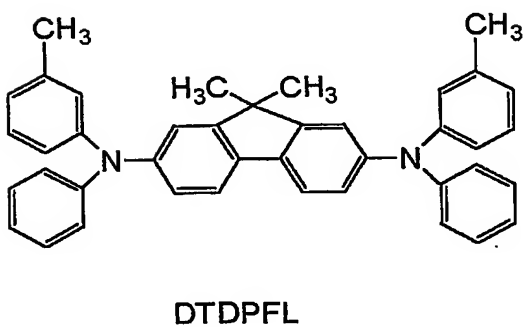
【0113】

【化 4 2】

ホール輸送性化合物



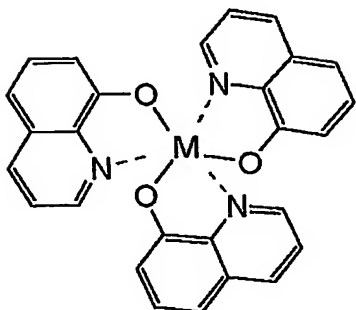
M : Cu, Mg, AlCl, TiO, SiCl₂, Zn, Sn, MnCl, GaCl, etc



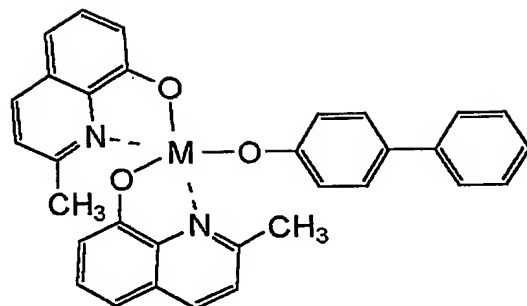
【 0 1 1 4 】

【化 4 3】

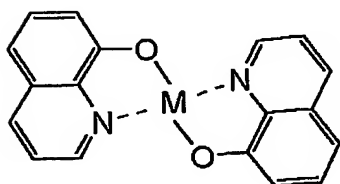
電子輸送性発光材料



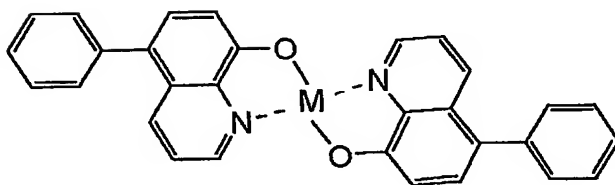
M : Al , Ga



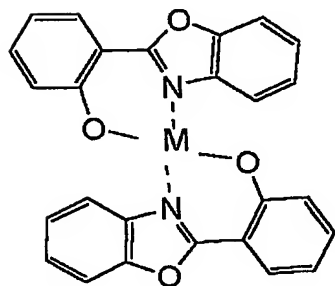
M : Al , Ga



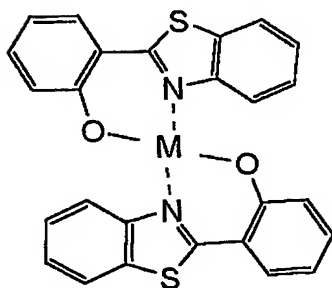
M : Zn , Mg , Be



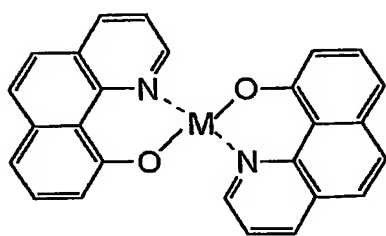
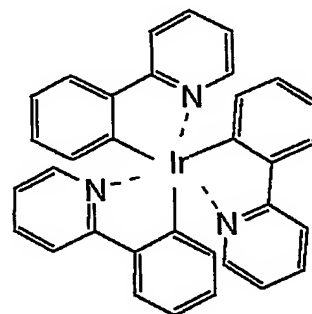
M : Zn , Mg , Be



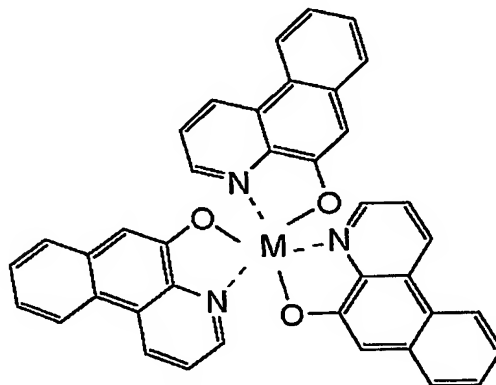
M : Zn , Mg , Be



M : Zn , Mg , Be



M : Zn , Mg , Be

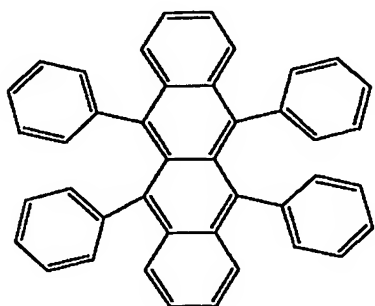
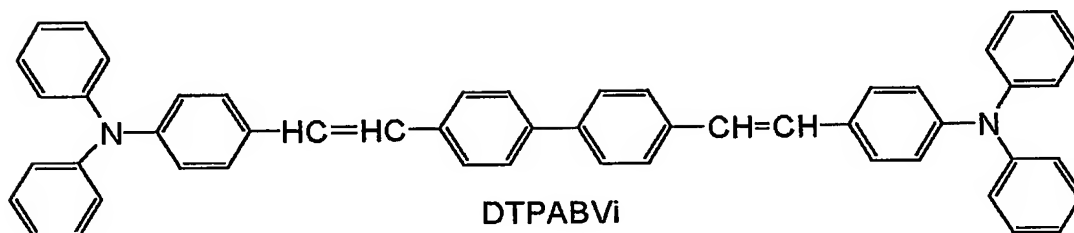
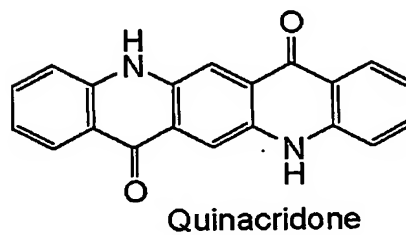
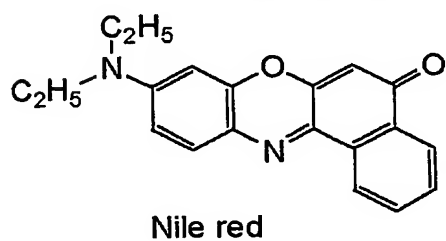
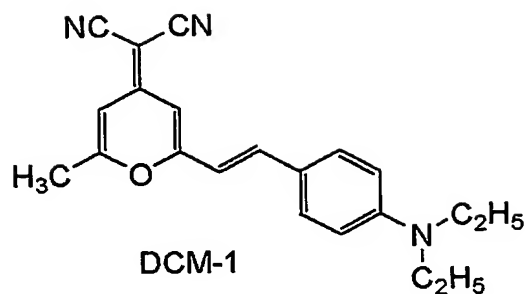
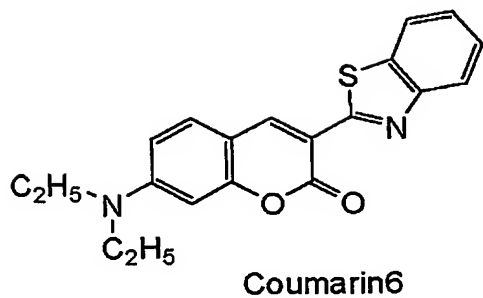


M : Al , Ga

【 0 1 1 5 】

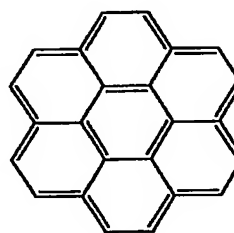
【化 4 4】

発光材料



Rubrene

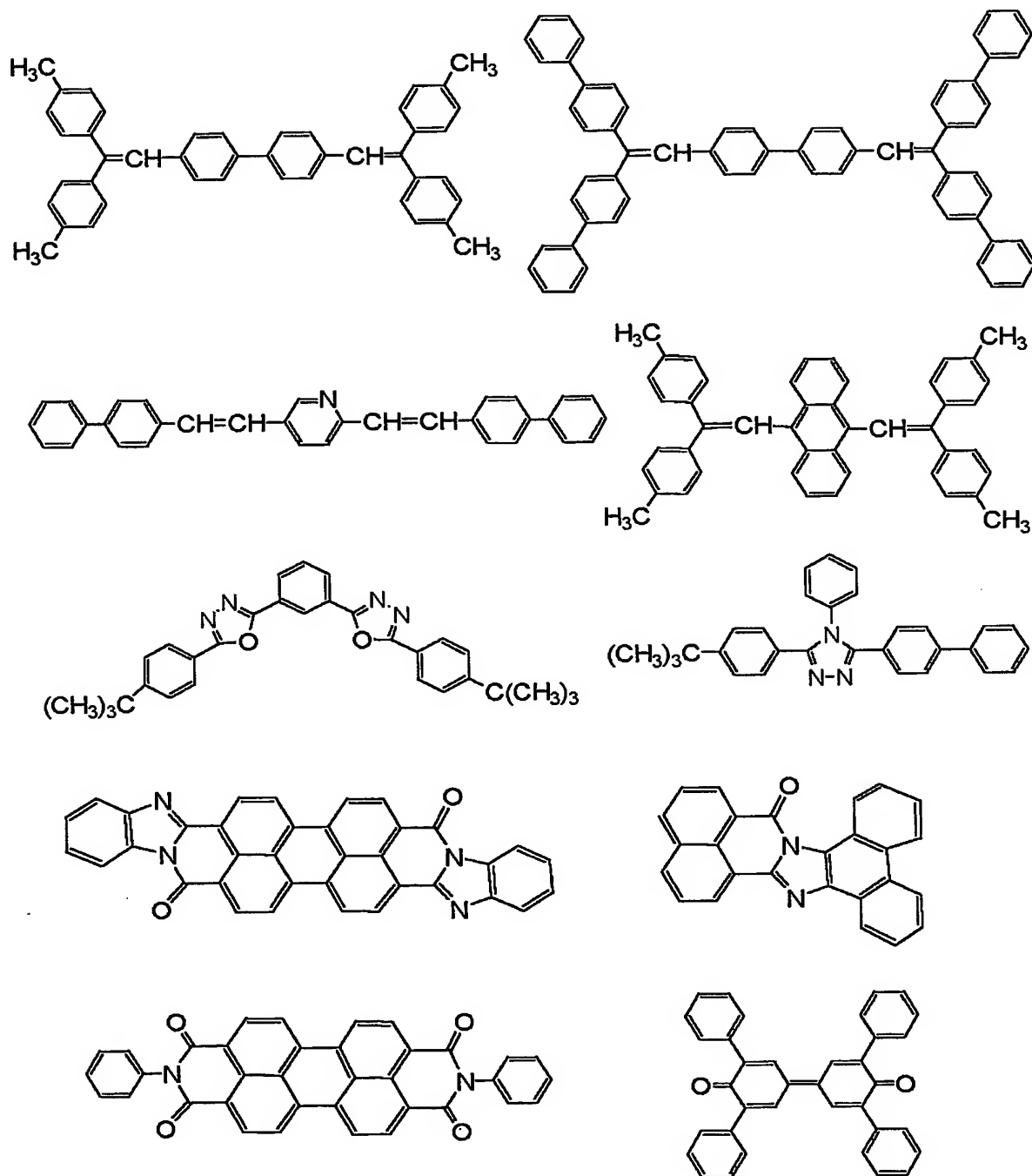
【0116】



Coronene

【化 4 5】

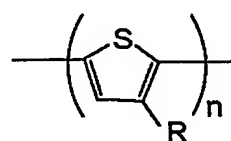
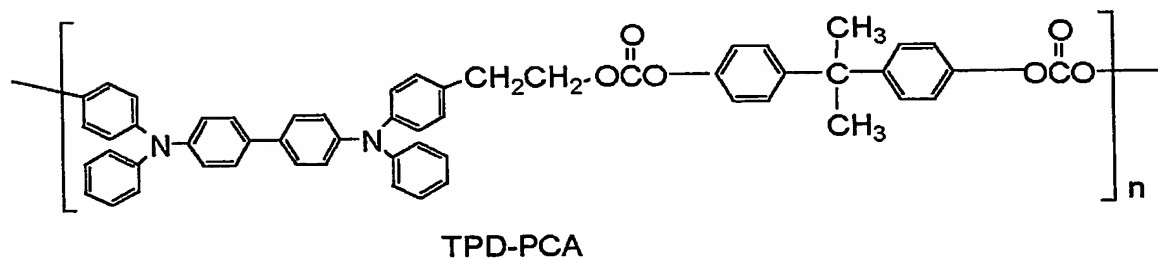
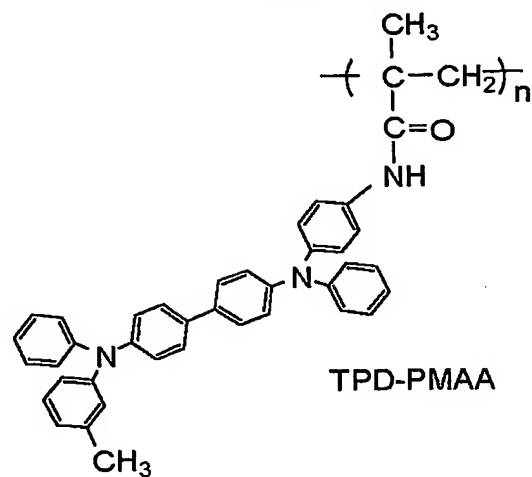
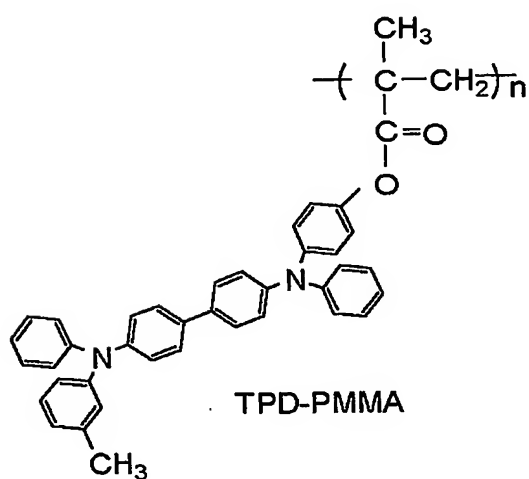
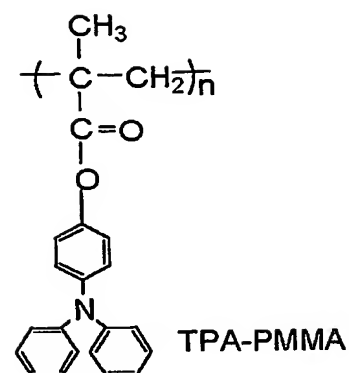
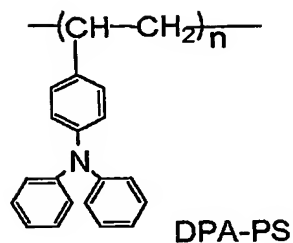
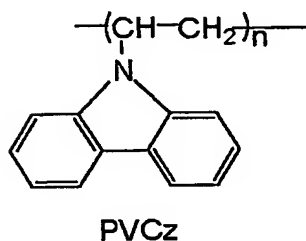
発光層マトリックス材料および電子輸送材料



【0117】

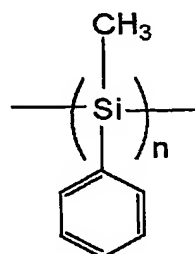
【化 4 6】

ポリマー系ホール輸送性材料

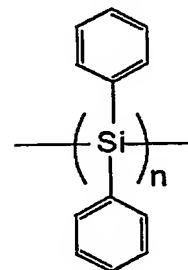
R: C₆H₁₃, C₈H₁₇, C₁₂H₂₅

Poly thiophene

【0 1 1 8】

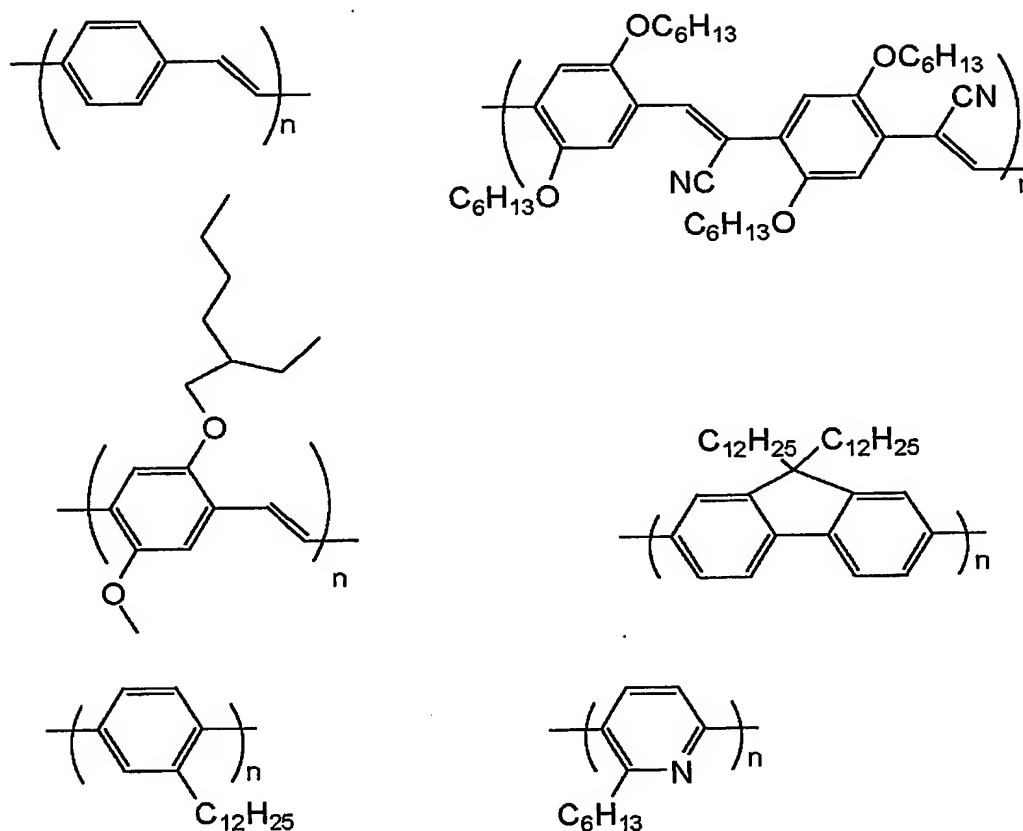


Polysilane



【化 4 7】

ポリマー系発光材料および電荷輸送性材料



【0119】

本発明の有機発光素子において、一般式〔1〕または〔2〕で示されるモノアミノフルオレン化合物を含有する層およびその他の有機化合物からなる層は、一般には真空蒸着法あるいは、適当な溶媒に溶解させて塗布法により薄膜を形成する。特に塗布法で成膜する場合は、適当な結着樹脂と組み合わせて膜を形成することもできる。

【0120】

上記結着樹脂としては、広範囲な結着性樹脂より選択でき、たとえばポリビニルカルバゾール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリスチレン樹脂、アクリル樹脂、メタクリル樹脂、ブチラール樹脂、ポリビニルアセタール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、ポリスルホン樹脂、尿素樹脂等が挙げられるが、これ

らに限定されるものではない。また、これらは単独または共重合体ポリマーとして1種または2種以上混合してもよい。

【0121】

陽極材料としては、仕事関数になるべく大きなものがよく、例えば、金、白金、ニッケル、パラジウム、コバルト、セレン、バナジウム等の金属単体あるいはこれらの合金、酸化錫、酸化亜鉛、酸化錫インジウム（ITO）、酸化亜鉛インジウム等の金属酸化物が使用できる。また、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリフェニレンスルフィド等の導電性ポリマーも使用できる。これらの電極物質は単独で用いてもよく、複数併用することもできる。

【0122】

一方、陰極材料としては、仕事関数の小さなものがよく、リチウム、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、アルミニウム、インジウム、銀、鉛、錫、クロム等の金属単体あるいは複数の合金として用いることができる。酸化錫インジウム（ITO）等の金属酸化物の利用も可能である。また、陰極は一層構成でもよく、多層構成をとることもできる。

【0123】

本発明で用いる基板としては、特に限定するものではないが、金属製基板、セラミックス製基板等の不透明性基板、ガラス、石英、プラスチックシート等の透明性基板が用いられる。また、基板にカラーフィルター膜、蛍光色変換フィルター膜、誘電体反射膜などを用いて発色光をコントロールする事も可能である。

【0124】

なお、作成した素子に対して、酸素や水分等との接触を防止する目的で保護層あるいは封止層を設けることもできる。保護層としては、ダイヤモンド薄膜、金属酸化物、金属窒化物等の無機材料膜、フッ素樹脂、ポリパラキシレン、ポリエチレン、シリコーン樹脂、ポリスチレン樹脂等の高分子膜、さらには、光硬化性樹脂等が挙げられる。また、ガラス、気体不透過性フィルム、金属などをカバーし、適当な封止樹脂により素子自体をパッケージングすることもできる。

【0125】

【実施例】

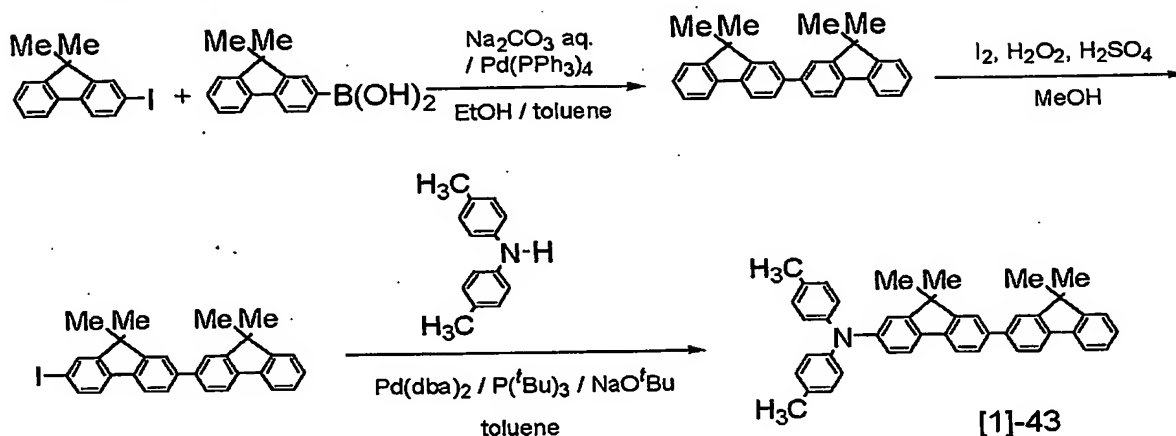
以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明していくが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0126】

<実施例1> [例示化合物No. [1]-43の製造方法]

【0127】

【化48】



【0128】

窒素気流下、2-ヨード-9,9-ジメチルフルオレン 2 g (6.25 mmol)、2-(ジヒドロキシボラニル)-9,9-ジメチルフルオレン 1.5 g (4.12 mmol) を、脱気したトルエン 80 ml、エタノール 40 ml の混合溶媒中に溶解、攪拌し、そこに無水炭酸ナトリウム 9 g を水 45 ml に溶解させ調整した炭酸ナトリウム水溶液 41 ml を滴下した。30分攪拌した後、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 238 mg (0.206 mmol) を加えた。80℃に加熱したオイルバス上で約5時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻した後、水 50 ml、酢酸エチル 50 ml を加え、水層と有機層を分離し、さらに水層をトルエン及び酢酸エチルで抽出し、前の有機層とあわせ硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン：ヘキサン=1：2)で精製して、ビス(9,9-ジメチルフルオレン) 1.5 g を得た。

【0129】

ビス(9,9-ジメチルフルオレン) 4.2 g (10.9 mmol)、ヨウ素、

1. 38 g (5.43 mmol)、50%硫酸0.5 gをメタノール80 ml中に溶解させ、60℃に加熱したオイルバス上で加熱攪拌し、そこに35 wt. % 過酸化水素水約1 gを滴下した。反応溶液を室温に戻した後、水30 mlを加え、析出した粗結晶をろ別した。粗結晶をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン：ヘキサン＝1：2）で精製して、ビス（9，9-ジメチルフルオレン）のモノヨード体5.0 gを得た。

【0130】

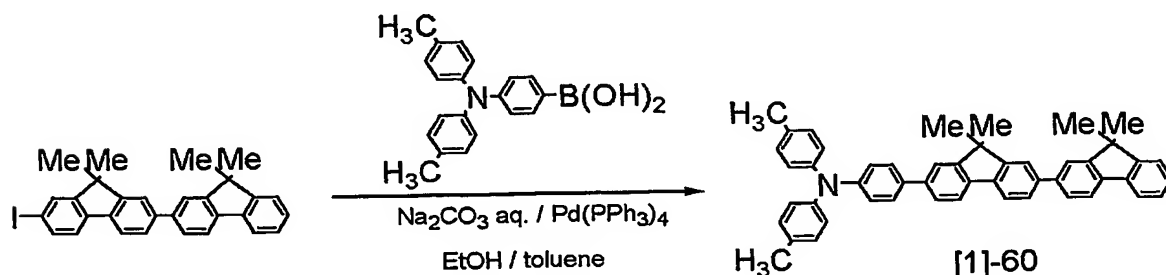
窒素気流下、パラジウムビス（ベンジリデンアセトン）113 mg（0.2 mmol）、トリ-tert-ブチルホスフィン120 mg（0.6 mmol）をトルエン40 mlに溶解させ、15分室温で攪拌した。そこに、トルエン50 mlに溶解させたビス（9，9-ジメチルフルオレン）のモノヨード体1.02 g（2 mmol）を滴下し、30分攪拌した。さらに、ビス（4-メチルフェニル）アミン0.59 g（3 mmol）を50 mlのトルエンに溶解させ滴下し、続いてtert-ブトキシドナトリウム0.43 g（4.5 mmol）を加えた。120℃に加熱したオイルバス上で約8時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻した後、水50 mlを加え、水層と有機層を分離し、さらに水層をトルエン及び酢酸エチルで抽出し、前の有機層とあわせ硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン：ヘキサン＝1：2）で精製して、例示化合物[1]-43を0.93 g得た。

【0131】

<実施例2> [例示化合物No. [1]-60の製造方法]

【0132】

【化49】



【0133】

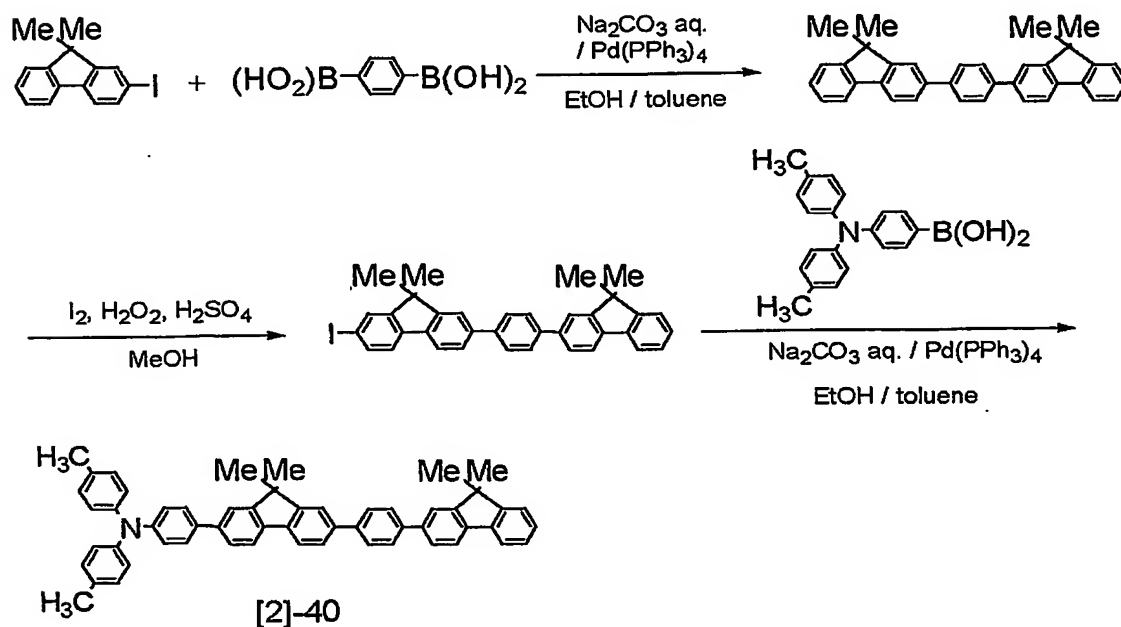
窒素気流下、ビス（9，9-ジメチルフルオレン）のモノヨード体 1.02 g（2 mmol）、ビス（4-メチルフェニル）アミノベンゼン-4-ボロニックアシド 0.97 g（3 mmol）を、脱気したトルエン 140 ml、エタノール 70 ml の混合溶媒中に溶解、攪拌し、そこに無水炭酸ナトリウム 6 g を水 30 ml に溶解させ調整した炭酸ナトリウム水溶液 30 ml を滴下した。30 分攪拌した後、テトラキス（トリフェニルホスフィン）パラジウム 174 mg（0.15 mmol）を加えた。80℃に加熱したオイルバス上で約 5 時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻した後、水 70 ml、酢酸エチル 70 ml を加え、水層と有機層を分離し、さらに水層をトルエン及び酢酸エチルで抽出し、前の有機層とあわせ硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン：ヘキサン＝1：2）で精製して、例示化合物 [1] - 60 を 1 g 得た。

【0134】

<実施例 3> [例示化合物 No. [2] - 40 の製造方法]

【0135】

【化 50】



【0136】

窒素気流下、2-ヨード-9，9-ジメチルフルオレン 6.94 g（21.7

mmol)、1, 4-フェニレンビスボロニックアシド 1 g (7.25 mmol) を、脱気したトルエン 120 ml、エタノール 60 ml の混合溶媒中に溶解、攪拌し、そこに無水炭酸ナトリウム 30 g を水 150 ml に溶解させ調整した炭酸ナトリウム水溶液 145 ml を滴下した。30分攪拌した後、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 840 mg (0.727 mmol) を加えた。80℃に加熱したオイルバス上で約3時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻した後、水 50 ml、酢酸エチル 50 ml を加え、水層と有機層を分離し、さらに水層をトルエン及び酢酸エチルで抽出し、前の有機層とあわせ硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン:ヘキサン=1:2)で精製して、1, 4-フェニレンビス(9, 9-ジメチルフルオレン) 3.02 g を得た。

【0137】

1, 4-フェニレンビス(9, 9-ジメチルフルオレン) 5.04 g (10.9 mmol)、ヨウ素 1.38 g (5.43 mmol)、50%硫酸 0.5 g をメタノール 120 ml 中に溶解させ、60℃に加熱したオイルバス上で加熱攪拌し、そこに35 wt. %過酸化水素水約 1 g を滴下した。反応溶液を室温に戻した後、水 30 ml を加え、析出した粗結晶をろ別した。粗結晶をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(トルエン:ヘキサン=1:2)で精製して、1, 4-フェニレンビス(9, 9-ジメチルフルオレン)のモノヨード体 5.9 g を得た。

【0138】

窒素気流下、1, 4-フェニレンビス(9, 9-ジメチルフルオレン)のモノヨード体 1.18 g (2 mmol)、ビス(4-メチルフェニル)アミノベンゼン-4-ボロニックアシド 0.97 g (3 mmol) を、脱気したトルエン 100 ml、エタノール 50 ml の混合溶媒中に溶解、攪拌し、そこに無水炭酸ナトリウム 6 g を水 30 ml に溶解させ調整した炭酸ナトリウム水溶液 30 ml を滴下した。30分攪拌した後、テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム 174 mg (0.15 mmol) を加えた。80℃に加熱したオイルバス上で約5時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻した後、水 60 ml、酢酸エチル 60 ml を加え、水層と有機層を分離し、さらに水層をトルエン及び酢酸エチルで

抽出し、前の有機層とあわせ硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去し、残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィー（トルエン：ヘキサン＝1：2）で精製して、例示化合物〔2〕－40を1.09 g得た。

【0139】

＜実施例4＞

図3に示す構造の有機発光素子を以下に示す方法で作成した。

【0140】

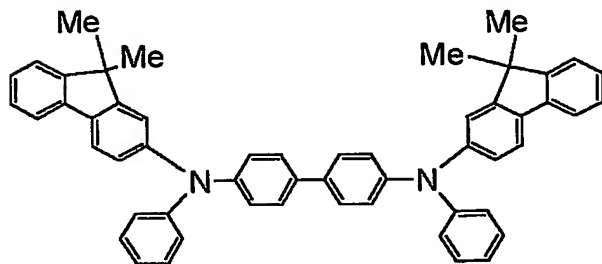
基板1としてのガラス基板上に、陽極2としての酸化錫インジウム（ITO）をスパッタ法にて120 nmの膜厚で成膜したものを透明導電性支持基板として用いた。これをアセトン、イソプロピルアルコール（IPA）で順次超音波洗浄し、IPAで煮沸洗浄、乾燥をした。さらに、UV／オゾン洗浄したものを透明導電性支持基板として使用した。

【0141】

正孔輸送材料として下記構造式で示される化合物を用いて、濃度が0.5 wt %となるようにクロロホルム溶液を調整した。

【0142】

【化51】



【0143】

この溶液を上記のITO電極（陽極2）上に滴下し、最初に500 RPMの回転で10秒、次に1000 RPMの回転で1分間スピンコートを行い、膜形成した。この後10分間、80℃の真空オーブンで乾燥し、薄膜中の溶剤を完全に除去した。形成されたTPD膜（ホール輸送層5）の厚みは50 nmであった。

【0144】

次に、ホール輸送層5の上に、前記例示化合物No.〔1〕－43を蒸着して

20 nmの発光層3を設けた。蒸着時の真空度は 1.0×10^{-4} Pa、成膜速度は0.2~0.3 nm/secの条件で成膜した。

【0145】

更に電子輸送層6としてアルミニウムキノリノール (Alq3) を真空蒸着法にて40 nmの膜厚に形成した。これら有機層の蒸着時の真空度は 1.0×10^{-4} Pa、成膜速度は0.2~0.3 nm/secの条件であった。

【0146】

次に、アルミニウム-リチウム合金 (リチウム濃度1原子%) からなる蒸着材料を用いて、先ほどの有機層の上に、真空蒸着法により厚さ10 nmの金属層膜を形成し、更に真空蒸着法により厚さ150 nmのアルミニウム膜を設け、アルミニウム-リチウム合金膜を電子注入電極 (陰極4) とする有機発光素子を作成した。蒸着時の真空度は 1.0×10^{-4} Pa、成膜速度は1.0~1.2 nm/secの条件で成膜した。

【0147】

得られた有機EL素子は、水分の吸着によって素子劣化が起こらないように、乾燥空気雰囲気中で保護用ガラス板をかぶせ、アクリル樹脂系接着材で封止した。

【0148】

この様にして得られた素子に、ITO電極 (陽極2) を正極、Al-Li電極 (陰極4) を負極にして、6 Vの印加電圧で、発光輝度780 cd/m²、最高輝度5900 cd/m²、発光効率0.73 lm/Wの青色の発光が観測された。

【0149】

<実施例5~13>

例示化合物 [1] - 43 に代えて、表14に示す例示化合物を用いた他は実施例4と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。その結果を表14に示す。

【0150】

【表 14】

実施例	例示化合物 No.	印加電圧 (V)	輝度 (cd/m ²)	最高輝度 (cd/m ²)	効率 (lm/W)
5	[1]-16	7	680	5000	0.57
6	[1]-49	6	880	6700	0.75
7	[1]-60	6	840	6100	0.83
8	[1]-92	6	900	6600	0.77
9	[1]-95	6	1000	6800	0.85
10	[1]-158	6	820	6400	0.72
11	[2]-17	6	820	5700	0.80
12	[2]-65	6	980	6800	0.87
13	[2]-85	6	810	5900	0.68

【0151】

<実施例 14>

例示化合物 No. [1]-60 および例示化合物 No. [3]-1 (重量比 5 : 100) を共蒸着し 20 nm の発光層 3 を設けた以外は、実施例 4 と同様にし
て素子を作成した。

【0152】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極
(陰極 4) を負極にして、6 V の印加電圧で、発光輝度 4200 cd/m²、最
高輝度 9600 cd/m²、発光効率 1.20/W の青色の発光が観測された。

【0153】

<実施例 15~23>

例示化合物 [1]-60 に代えて、表 15 に示す例示化合物を用いた他は実施
例 10 と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。その結果を表 15 に示す。

【0154】

【表 15】

実施例	例示化合物 No.	印加電圧 (V)	輝度 (cd/m ²)	最高輝度 (cd/m ²)	効率 (lm/W)
15	[1]-6	7	2900	6500	0.67
16	[1]-47	6	6800	17200	1.74
17	[1]-49	6	6300	16600	1.62
18	[1]-80	6	5100	11500	1.30
19	[1]-91	6	5200	13100	1.42
20	[1]-99	6	6900	16500	1.80
21	[2]-17	6	4600	11700	1.28
22	[2]-65	6	6100	14200	1.52
23	[2]-85	6	5100	11900	1.39

【0155】

<実施例 24>

例示化合物 No. [1]-43 および例示化合物 No. [3]-15 (重量比 5:100) を共蒸着し 20 nm の発光層 3 を設けた以外は、実施例 4 と同様に素子を作成した。

【0156】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極 (陰極 4) を負極にして、6 V の印加電圧で、発光輝度 3900 cd/m²、最高輝度 10500 cd/m²、発光効率 1.121 lm/W の青色の発光が観測された。

【0157】

<実施例 25>

例示化合物 No. [1]-43 に代えて、例示化合物 No. [2]-40 を用いた他は実施例 24 と同様に素子を作成した。

【0158】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極 (陰極 4) を負極にして、6 V の印加電圧で、発光輝度 4200 cd/m²、最高輝度 13100 cd/m²、発光効率 1.125 lm/W の青色の発光が観測された。

【0159】

<実施例26>

例示化合物No. [1]-92および例示化合物No. [4]-1（重量比5：100）を共蒸着し20nmの発光層3を設けた以外は、実施例4と同様にし
て素子を作成した。

【0160】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度6000cd/m²、最高輝度12200cd/m²、発光効率1.45lm/Wの青色の発光が観測された。

【0161】

<実施例27～30>

例示化合物No. [1]-92に代えて、表16に示す例示化合物を用いた他は実施例26と同様に素子を作成し、同様な評価を行った。その結果を表16に示す。

【0162】

【表16】

実施例	例示化合物 No.	印加電圧 (V)	輝度 (cd/m ²)	最高輝度 (cd/m ²)	効率 (lm/W)
27	[1]-66	6	5600	11800	1.33
28	[1]-158	6	3900	9800	1.17
29	[2]-17	6	5300	14100	1.47
30	[2]-65	6	6600	15400	1.61

【0163】

<実施例31>

例示化合物No. [1]-60および前記例示化合物No. [5]-1（重量比5：100）を共蒸着し20nmの発光層3を設けた以外は、実施例4と同様にし
て素子を作成した。

【0164】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度4500cd/m²、最高輝度13700cd/m²、発光効率1.35lm/Wの青色の発光が観測された。

【0165】

<実施例32>

例示化合物No. [1]-60に代えて、例示化合物No. [2]-40を用いた他は実施例31と同様に素子を作成した。

【0166】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度4900cd/m²、最高輝度15200cd/m²、発光効率1.45lm/Wの青色の発光が観測された。

【0167】

<実施例33>

例示化合物No. [1]-60および例示化合物No. [6]-2（重量比5:100）を共蒸着し20nmの発光層3を設けた以外は、実施例4と同様に素子を作成した。

【0168】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度4700cd/m²、最高輝度15800cd/m²、発光効率1.65lm/Wの青色の発光が観測された。

【0169】

<実施例34>

例示化合物No. [6]-2に代えて、例示化合物No. [6]-9を用いた他は実施例33と同様に素子を作成した。

【0170】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極

(陰極4)を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度 5900 cd/m^2 、最高輝度 18200 cd/m^2 、発光効率 1.851 m/W の青色の発光が観測された。

【0171】

<実施例35>

例示化合物No. [1]-92および前記例示化合物No. [7]-1 (重量比5:100)を共蒸着し20nmの発光層3を設けた以外は、実施例4と同様にして素子を作成した。

【0172】

この様にして得られた素子に、ITO電極(陽極2)を正極、Al-Li電極(陰極4)を負極にして、6Vの印加電圧で、発光輝度 5100 cd/m^2 、最高輝度 12300 cd/m^2 、発光効率 1.381 m/W の青色の発光が観測された。

【0173】

<実施例36~43>

実施例4, 15, 21, 26, 31, 33, 34, 35で作成した素子の発光スペクトルをMCPD-7000で観測し、CIE色度座標を測定した。その結果を表17に示す。

【0174】

【表17】

実施例	素子の実施例	CIE 色度座標 (x, y)
36	4	0.15, 0.10
37	15	0.15, 0.10
38	21	0.15, 0.11
39	26	0.15, 0.10
40	31	0.16, 0.10
41	33	0.15, 0.09
42	34	0.15, 0.09
43	35	0.15, 0.11

【0175】

<実施例 44>

例示化合物 No. [7] - 1 および例示化合物 No. [2] - 65 (重量比 5 : 100) を共蒸着し 20 nm の発光層 3 を設けた以外は、実施例 4 と同様にし
て素子を作成した。

【0176】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極
(陰極 4) を負極にして、6 V の印加電圧で、発光輝度 4700 cd/m^2 、最
高輝度 11100 cd/m^2 、発光効率 1.301 m/W の青色の発光が観測さ
れた。

【0177】

<実施例 45>

例示化合物 No. [1] - 43 および例示化合物 No. [2] - 65 (重量比
5 : 100) を共蒸着し 20 nm の発光層 3 を設けた以外は、実施例 4 と同様に
して素子を作成した。

【0178】

この様にして得られた素子に、ITO 電極 (陽極 2) を正極、Al-Li 電極
(陰極 4) を負極にして、6 V の印加電圧で、発光輝度 5900 cd/m^2 、最
高輝度 12600 cd/m^2 、発光効率 1.391 m/W の青色の発光が観測さ
れた。

【0179】

<実施例 46>

実施例 13 で作成した素子に、窒素雰囲気下で電流密度を 7.0 mA/cm^2
に保ち 100 時間電圧を印加したところ、初期輝度 480 cd/m^2 から 100
時間後、 420 cd/m^2 と輝度劣化は小さかった。

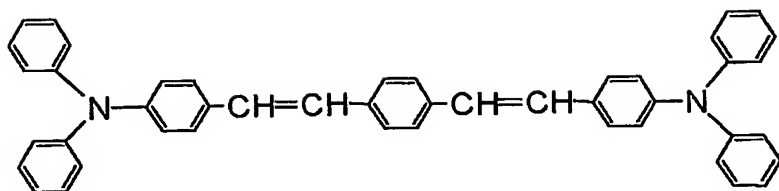
【0180】

<比較例 1>

発光層として下記スチリル化合物を用いた以外は、実施例 4 と同様に素子
を作成した。

【0181】

【化52】



【0182】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、10Vの印加電圧で、発光輝度120cd/m²、最高輝度3800cd/m²、発光効率0.17lm/Wの緑味がかった青白色の発光が観測された。

【0183】

<比較例2>

上記スチリル化合物および例示化合物No. [4]-1（重量比5:100）を共蒸着し20nmの発光層3を設けた以外は、実施例4と同様にして素子を作成した。

【0184】

この様にして得られた素子に、ITO電極（陽極2）を正極、Al-Li電極（陰極4）を負極にして、10Vの印加電圧で、発光輝度125cd/m²、最高輝度4500cd/m²、発光効率0.30lm/Wの緑味がかった青白色の発光が観測された。

【0185】

<比較例3>

比較例2で作成した素子の発光スペクトルをMCPD-7000で観測し、CIE色度座標を測定したところ、(x, y) = (0.16, 0.30)であった。

【0186】

【発明の効果】

以上説明のように、本発明の一般式[1]または[2]で示されるモノアミノフルオレン化合物を用いた有機発光素子は、単層あるいはドーパント/ホストの

混合層として、低い印加電圧で高輝度な発光が得られ、色純度、耐久性にも優れている。さらに、素子の作成も真空蒸着あるいはキャスト法等を用いて作成可能であり、比較的安価で大面積の素子を容易に作成できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明における有機発光素子の一例を示す断面図である。

【図 2】

本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 3】

本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 4】

本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 5】

本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

【図 6】

本発明における有機発光素子の他の例を示す断面図である。

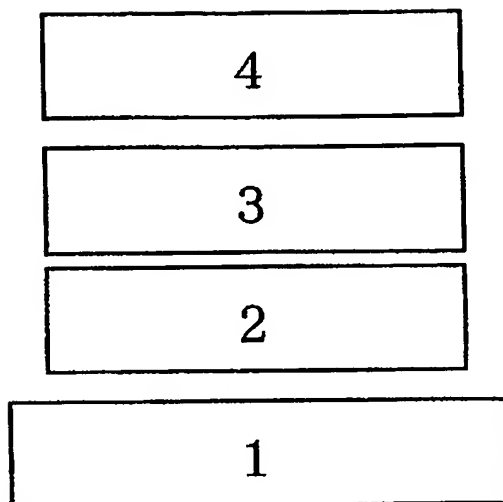
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 発光層
- 4 陰極
- 5 ホール輸送層
- 6 電子輸送層
- 7 ホール注入層
- 8 ホール／エキシトンブロッキング層

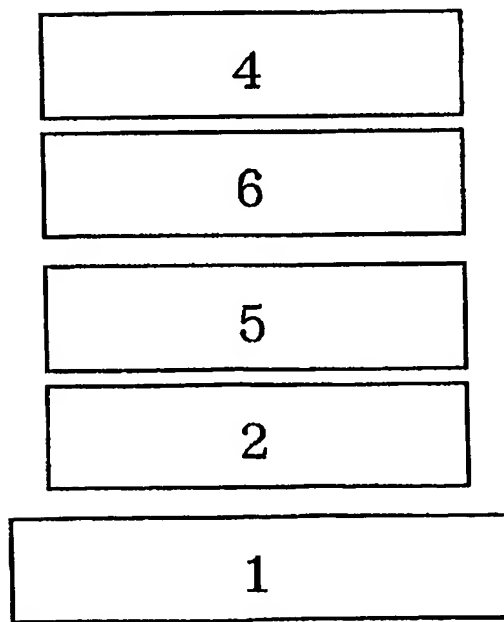
【書類名】

図面

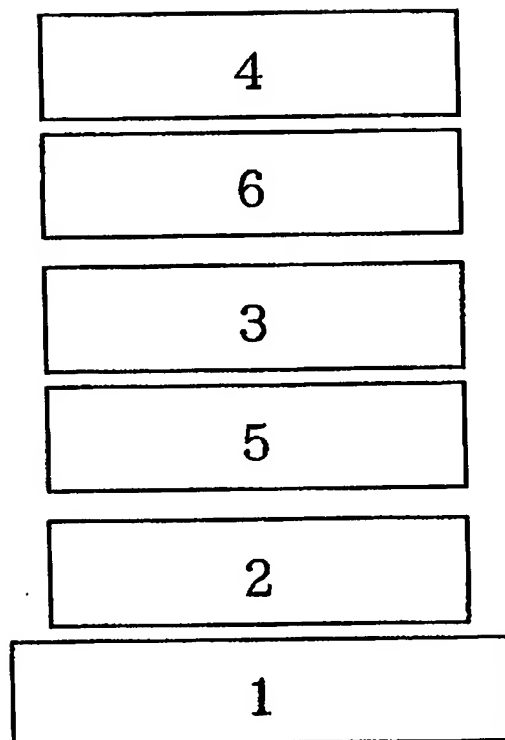
【図 1】



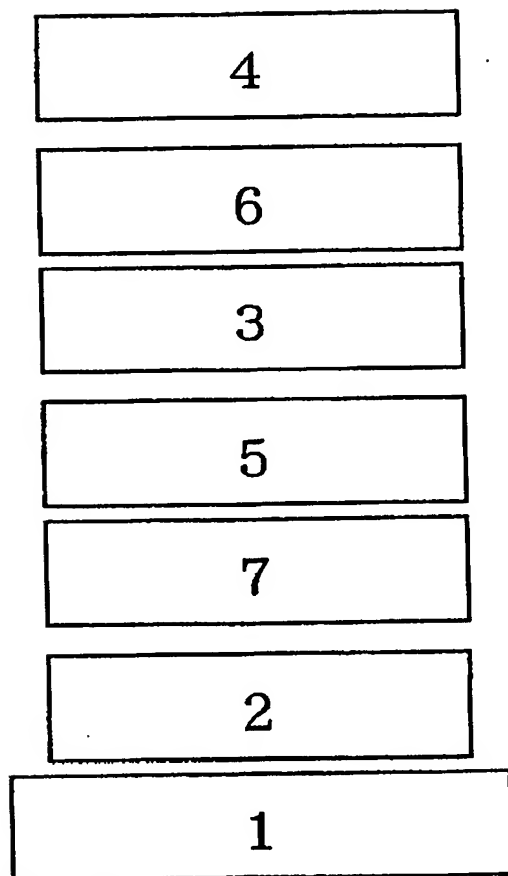
【図 2】



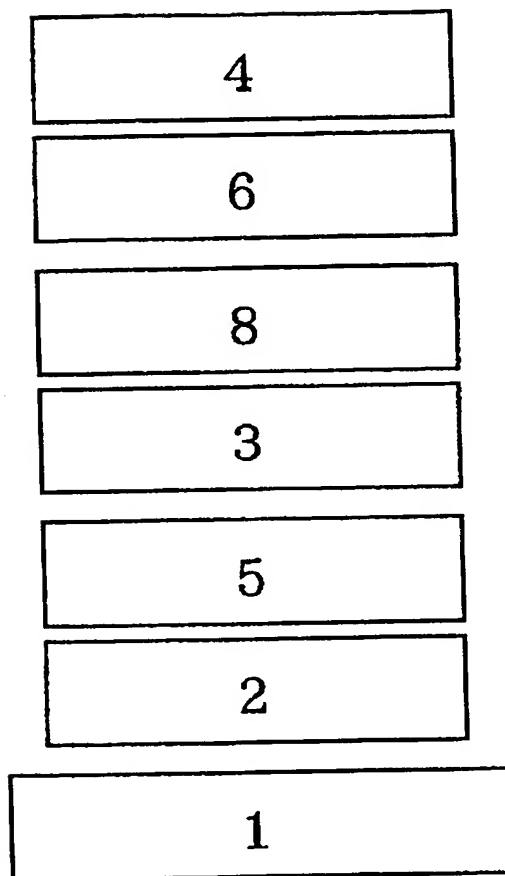
【図 3】



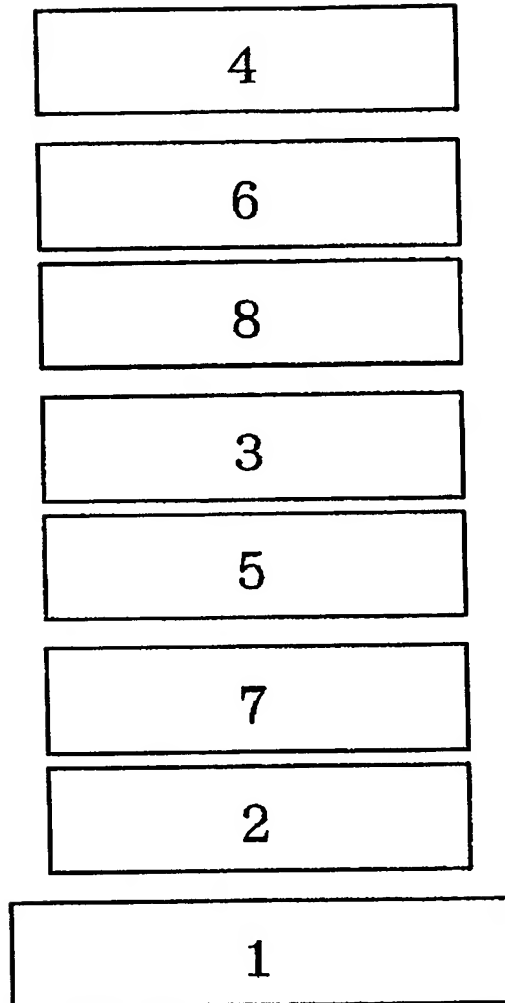
【図 4】



【図 5】



【図 6】



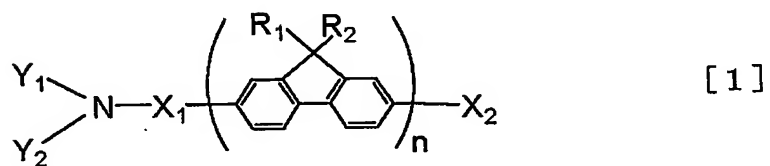
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 新規なモノアミノフルオレン化合物を提供し、この化合物を用いて、極めて純度のよい発光色相を呈し、高効率で高輝度、高寿命の光出力を有する有機発光素子を提供する。

【解決手段】 下記一般式〔1〕で示されるモノアミノフルオレン化合物。

【化1】



【選択図】 なし

特願 2002-252846

出願人履歴情報

識別番号

[000001007]

1. 変更年月日

1990年 8月30日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都大田区下丸子3丁目30番2号

氏 名

キヤノン株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.